# UNTERSUCHUNGEN ZUR ANISOTROPEN ZERSTÄUBUNG VON HEXAGONALEN METALLEINKRISTALLEN DURCH EDELGASIONEN IM ENERGIEBEREICH ZWISCHEN 10 UND 40 keV

Wolfgang O. Hofer

1972

# UNTERSUCHUNGEN ZUR ANISOTROPEN ZERSTÄUBUNG VON HEXAGONALEN METALLEINKRISTALLEN DURCH EDELGASIONEN IM ENERGIEBEREICH ZWISCHEN 10 UND 40 keV

Inaugural-Dissertation

zur Erlangung der Doktorwürde
der Hohen Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Ludwigs-Maximilians-Universität
München

Vorgelegt von
Diplomingenieur Wolfgang O. Hofer
geboren in Dresden

München 1972

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Tag der Einreichung: 16. März 1972
1. Berichterstatter: Prof. Dr. R. Sizmann
2. Berichterstatter: Prof. Dr. A. Faessler
Tag der mündlichen Prüfung: 15. Juni 1972

DISSERTATIONS – und FOTODRUCK FRANK oHG
8000 München 2 · Gabelsbergerstr. 15 · Tel.: 2 80 90 90

Inhaltsverzeichnis


| | Seite |
|---|---|
| 1. Einleitung | 1 |
| 1.1. Problemstellung und Terminologie | 1 |
| 1.2. Anisotrope Emission als Folge fokussierender Stöße | 3 |
| 1.3. Anisotrope Emission als Folge einer geordneten Oberfläche | 8 |
| 1.4. Ausgangspunkt dieser Arbeit | 11 |
| 2. Experimentelles | |
| 2.1. Zerstäubungsapparatur | 17 |
| 2.2. Auswertung der Zerstäubungsmuster | 20 |
| 2.3. Elektronensonde | 22 |
| 2.4. Herstellung der Eichschichten | 31 |
| 2.5. Kristallpräparation | 35 |
| 3. Meßergebnisse | |
| 3.1. Schichtdickenmessung mit Hilfe der Elektronensonde | |
| 3.1.1. Nicht-dispersive Messungen | 37 |
| 3.1.2. Dispersive Messungen | 38 |
| 3.1.2.1. Eichung für Kupfer und Zink | 41 |
| 3.1.2.2. Eichung für Silber | 43 |
| 3.1.2.3. Eichung für Aluminium und Magnesium | 45 |
| 3.1.3. Allgemeines zur Methodik | 50 |
| 3.2. Niederschlags- und Emissionsverteilungen | |
| 3.2.1. Zink | 59 |
| 3.2.2. Magnesium | 70 |
| 3.2.2.1. Magnesium (0001) | 70 |
| 3.2.2.2. Magnesium $(10\bar{1}0)$ | 73 |
| 3.2.2.3. Magnesium $(11\bar{2}0)$ | 78 |
| 3.2.2.4. Magnesium $(36\bar{9}8)$ | 80 |
| 3.2.3. Aluminium | 86 |
| 3.3. Oberflächenuntersuchungen | 90 |

Seite

4. Diskussion der Zerstäubungsmessungen
   4.1. Ergänzende Erklärungen 93
   4.2. Fokussonen in Aluminium und Magnesium? 97
   4.3. Vergleich mit Elementen höherer Ordnungszahl 102

Anhang
A.I Hilfsfokussierung in ⟨0001⟩ -Richtung von hcp-Kristallen 104
A.II Einfluß von Keimbildung und Kondensation auf die Abbildung von Emissionsverteilungen auf Auffängern 109

Zusammenfassung 115

Schrifttum 117

Danksagung 125

Lebenslauf 126

# 1. Einleitung

## 1.1. Problemstellung und Terminologie

Trifft ein energiereiches Teilchen ($E_o > 50$ eV, $m > m_H$) auf kondensierte Materie, so verliert es durch elektronische und nukleare Wechselwirkung sukzessive seine Energie. Beim nuklearen Stoß kann an einzelne Targetatome so viel Energie übertragen werden, daß diese ihrerseits weitere Atome in Bewegung setzen. Es bildet sich eine Stoßkaskade aus. In Festkörpern hat dies zur Folge, daß eine von der Einschußenergie $E_o$ und der Schwellenenergie für Verlagerung $E_d$ abhängige Anzahl von Atomen ihre Gitterplätze verlassen. Im Inneren des Kristalles führt die Kaskade zu einer Energiedeposition in Form von Gitterdefekten. An der Oberfläche hingegen können angestoßene Atome aus dem Gitterverband emittiert werden, sobald die übertragene Energie die Oberflächenbindungsenergie übertrifft. Durch diese Zerstäubungsprozesse werden etwa 2% der Einschußenergie abgeführt /1/,/2/. Nach etwa $10^{-13}$ Sekunden sind die Stoßprozesse abgeklungen. Es verbleibt ein stark "aufgeheizter" Bereich, der seine Überschußenergie durch Phononenanregung an das Kristallgitter abgibt. Dies geschieht in Zeiträumen bis zu $10^{-11}$ Sekunden /3/.

Die Erscheinung der (Kathoden-)Zerstäubung ist seit mehr als 100 Jahren bekannt*. Bis etwa zur Mitte dieses Jahrhunderts wurde sie eher für eine lokale Verdampfung gehalten /9/,/10/; erst die durch WEHNER /11/ im Jahre 1955 entdeckte Anisotropie der räumlichen Emissionsverteilung verhalf der bereits 1908 von STARK/12/ vertretenen Impulsübertragungstheorie /13/ zum Durchbruch.

WEHNER hatte gefunden, daß bei Beschuß von Einkristallen mit $Hg^+$-Ionen im Energiebereich zwischen 50 eV bis 500 eV nicht die von Polykristallen her bekannten kosinus-förmigen Emissionsverteilungen auftreten, sondern daß die Emission in gewisse Gitterrichtungen bevorzugt erfolgt. Diese Gittergeraden sind durchwegs niedrigindiziert, zeichnen sich also durch dichte Atompackung aus. Z.B. traten besonders intensive Maxima der Zerstäubungs-

---

*Monographien dazu: /4/.../8/

charakteristik stets in ⟨110⟩-Richtungen kubisch-flächenzentrierter Metalle auf. YURASOVA /14/,/15/ bestätigte die Existenz der sog. WEHNER-Spots für Projektilenergien bis zu 8 keV, PEROVIČ /16/,/17/,/18/ schließlich bis über 1 MeV. - All diese Versuche wurden an kompakten Kristallen durchgeführt, d.h. es wurde die sog. Rückwärtszerstäubung gemessen. THOMPSON /19/, /20/ gelang der Nachweis der anisotropen Zerstäubung auch in Vorwärtsrichtung bei Durchstrahlung dünner, einkristalliner Goldfolien.

1957 wies SILSBEE /21/ darauf hin, daß die Ausbreitung der Stoßkaskade in einkristallinen Festkörpern durch die Gitterstruktur beeinflußt werden kann. Insbesondere machte er auf die Möglichkeit einer Impulsfokussierung entlang der ⟨110⟩-Richtung kubisch-flächenzentrierter (fcc) Gitter aufmerksam. Maschinenrechnungen zum Energiedissipationsprozess energiereicher Atome in einem Kupfer-Einkristall zeigten diese fokussierenden Stoßfolgen auch deutlich /22/. Eine weitere Bestätigung der Fokussonenhypothese sahen NELSON & THOMPSON /20/,/23/,/24/ in den ausgeprägten Niederschlagsmaxima, welche sie nach Zerstäubung von Aluminium-, Kupfer-, Silber- und Gold-Einkristallen auf gläsernen Auffängerscheiben erhielten. Seit diesen Arbeiten galten Maxima der Emissionscharakteristik lange Zeit als Evidenz für fokussierende Stoßfolgen.

Erst LEHMANN & SIGMUND /28/ zeigten Unstimmigkeiten in der Interpretation der anisotropen Zerstäubung im Fokussonenmodell auf. Hierzu gehören:

a) WEHNER-Spots werden über 5 Größenordnungen der Projektilenergie beobachtet. Am niederenergetischen Ende dieses Bereiches liegt die Eindringtiefe der Projektile in der Größenordnung der Gitterkonstanten. Hier können gar keine fokussierenden Stoßfolgen die Oberfläche durchsetzen und damit zur Zerstäubung beitragen;
b) die ⟨20$\bar{2}$3⟩-Richtung hexagonaler Metalle weist deutliche Emissionsmaxima auf, obwohl auf diesen Gittergeraden jeweils nur 2 Atome dichtest benachbart liegen und das nächste Paar 6 Gitterkonstanten weit entfernt ist. Kein Fokussonenmechanismus vermag entlang solcher Geraden eine anisotrope Emission zu erklären.

Die genannten Autoren gaben für die Entstehung der Emissionsmaxima eine andere Erklärung, ohne jedoch die Existenz fokussierender Stoßfolgen in Abrede zu stellen. Dieses sog. "Oberflächenmodell" erklärt die anisotrope Emission als Konsequenz des hohen Anteils niederenergetischer Rückstoßatome im Energiespektrum in Verbindung mit einer geordneten Oberflächenstruktur. Das Modell kann heute für Projektilenergien unter etwa 1 keV als gesichert angesehen werden /29/,/30/. Bei höheren Energien sind die Meinungen noch geteilt /31/-/34/.

In den Kapiteln 1.2. und 1.3. werden diese beiden Modelle getrennt voneinander kurz behandelt, in 1.4. wird die den hexagonalen Metallen zukommende Rolle bei der Entscheidung zugunsten des einen oder anderen Modells besprochen.

## 1.2. Anisotrope Emission als Folge fokussierender Stöße

Ein elastischer Stoß zweier Atome kann für nicht zu große Stoßparameter näherungsweise als Stoß zwischen 2 harten Kugeln beschrieben werden (Harte-Kugel-Näherung, HKN). Der Stoßradius R wird hier aus der minimalen Distanz bei zentralem Stoß errechnet:

$$E_{rel} = V(r=R) \quad . \tag{1.1}$$

Er entspricht dem doppelten Kugelradius. Für den Bereich

$$0{,}5 < R < 2\text{Å}$$

kann der Verlauf des Wechselwirkungspotentials V(r) durch eine Exponentialfunktion

$$V(r) = A\, e^{-\frac{r}{a}} \qquad A,a\ldots\text{.Konstante} \tag{1.2}$$

angenähert werden (Born-Mayer-Potential). Für Stöße zwischen Atomen gleicher Masse ist die Relativenergie $E_{rel}$ gleich der halben Energie des stoßenden Teilchens $E_1$ im Laborsystem, so daß mit (1.2)

$$R = a \ln \frac{2A}{E_1} \quad . \tag{1.3}$$

Der Kugelradius in der HKN (=R/2) nimmt also mit fallender Energie der in der Stoßkaskade erzeugten Rückstoßatome zu. Liegt deren mittlere freie Weglänge in der Größenordnung der Gitterkonstanten, so kann der Einfluß der Kristallgitterstruktur nicht mehr vernachlässigt werden: für die in Abb.1 dargestellten Atomreihen kommt es zu einer Folge von korrelierten Stößen, sobald

$$\Theta_1 \leq \Theta_F = \arccos \frac{D}{2R} \quad . \tag{1.4}$$

$\Theta_1$...Winkel zwischen der Verbindungsgeraden der Atome und der Bewegungsrichtung des ersten stoßenden Atoms

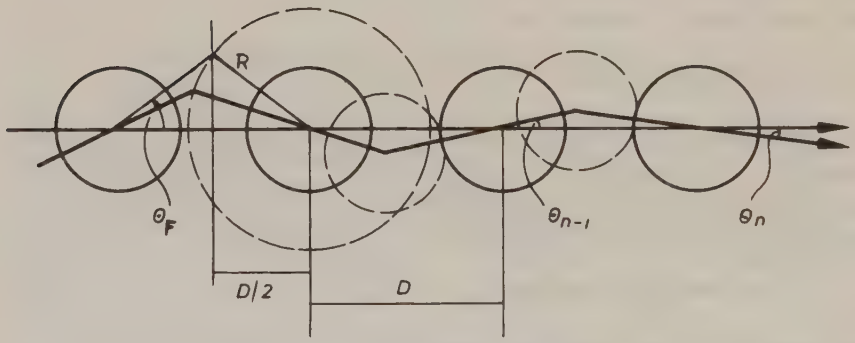



Abb.1: Impulsfokussierung entlang einer Atomreihe (z.B. ⟨110⟩ in fcc-, ⟨111⟩ in bcc- und ⟨11$\bar{2}$0⟩ in hcp-Gittern)
D...Abstand der Atome in der Kette
$\Theta_F$...Fokussierungsgrenzwinkel bei gegebenem Stoßradius R

Der Flugwinkel des angestoßenen Atoms, $\Theta_2$, ergibt sich aus

$$\sin\Theta_2 = \sin\Theta_1 \left\{ \frac{D}{R}\cos\Theta_1 - \sqrt{1-\left(\frac{D}{R}\right)^2 \sin^2\Theta_1} \right\} \quad , \tag{1.5}$$

welche für kleine Winkel $\Theta$ in

$$(\Lambda \equiv)\ \frac{\Theta_2}{\Theta_1} = \frac{D}{R} - 1 \tag{1.6}$$

übergeht. Zu einer Impulsfokussierung ($\Theta_2 < \Theta_1$, $\Lambda < 1$)

kommt es schließlich, sobald

$$\frac{D}{R} < 2 \cdot \cos \Theta_1 \approx 2 \qquad (1.7)$$

erfüllt ist. Die Größe $\Lambda(E_1)$ wird Fokussierungsparameter genannt. Aus (1.7) und (1.3) läßt sich eine obere Energiegrenze $E_f$, die sog. Fokussierungsenergie, berechnen ($\Lambda(E_f) = 1$)

$$E_f = 2\, A\, e^{-\frac{D}{2a}} \quad , \qquad (1.8)$$

oberhalb der eine Impulsfokussierung nicht mehr möglich ist. Der Fokussonenexistenzbereich nimmt daher zu mit

abnehmendem Atomabstand D in der Kette. Z.B. für Kupfer beträgt $E_f^{\langle 110\rangle} = 50$ eV, wohingegen $E_f^{\langle 100\rangle} = 4$ eV, da $D^{\langle 100\rangle} = \sqrt{2}\, D^{\langle 110\rangle}$; hierbei ist die sog. Hilfsfokussierung nicht berücksichtigt (vgl.S.7);

zunehmender Ordnungszahl Z, da mit Z auch die Ausdehnung der Elektronenhülle steigt. Für das Born-Mayer-Potential (1.2) gilt näherungsweise /35/

$$A = 52\, Z^{\frac{3}{2}} \text{ eV} \qquad a = 0{,}219\ \text{Å} \quad . \qquad (1.9)$$

Nach n Stößen beträgt der Flugwinkel zur Kette nur mehr

$$\Theta_n = \Lambda^{n-1}\, \Theta_1 \quad , \qquad (1.10)$$

die Stöße erfolgen, da sie nahezu zentral verlaufen, mit optimalem Energietransfer. Eine isolierte statische Atomkette könnte somit einen bestimmten Energiebetrag unendlich weit transportieren. In Kristallen kommt es jedoch wegen der Nachbaratomreihen und der thermischen Gitterschwingungen zu Energieverlusten, die die Fokussonenreichweiten auf endliche Werte reduzieren.

Durchsetzt solch eine Stoßfolge die Kristalloberfläche, so kommt es zur Emission des Oberflächenatomes, falls die Fokussonenenergie die Bindungsenergie übertrifft. Reicht sie hingegen nicht aus, oder verläuft die Folge zur Gänze im Kristall, so wird die gesamte Fokussonenenergie in Gitterschwingungen (Wärme) übergeführt.

LEHMANN & LEIBFRIED /26/ korrigierten dieses Modell der Billardkugelkette tiefgreifend. Eine exakte Behandlung der Streuprozesse bei kleinen Stoßparametern ergab:

1) Streuwinkel sind unter Anwendung eines realistischen Potentials kleiner als in der HKN. Will man trotzdem das HKN-Konzept beibehalten, so muß ein effektiver Stoßradius $R_{eff} < R$ verwandt werden;
2) während sich das stoßende Atom auf das folgende der Reihe zubewegt, läuft letzteres bereits auf das nächste zu. Dies führt zu einer effektiven Verkleinerung des Reihenabstandes D;
3) es ändert sich nicht nur der Wert der Fokussierungsenergie, sondern auch das gesamte Erscheinungsbild der fokussierenden Stoßfolge: etwa 3/4 aller Stöße einer mit $E_1 = E_f$ startenden Stoßfolge verlaufen nun als Ersetzungsstöße und haben entweder die Emission eines Oberflächenatoms oder die Produktion eines Zwischengitteratoms zur Folge*.

Die von LEHMANN & LEIBFRIED abgeleitete Beziehung für die Fokussierungsenergie stimmt sehr gut mit den Maschinenrechnungen von GIBSON et al. /22/ überein. Die Fokussierungsenergie reduziert sich danach auf etwa den halben Wert der HKN und beträgt nun für Kupfer etwa 36 eV. Auf diesen Ergebnissen basierend, leitete SIGMUND /35/ einen Ausdruck für $E_f$ ab, mit dem im folgenden stets gerechnet wird:

$$E_f = 2\,A \exp\left\{-\frac{D}{4a}\left[1 + \sqrt{1 + \frac{8a}{D}}\right]\right\} \quad . \tag{1.11}$$

Die bereits erwähnten Maschinenrechnungen von GIBSON et al./22/ zeigen nicht nur in ⟨110⟩-Richtungen des Kupfergitters korrelierte Stöße, sondern auch in ⟨100⟩. Dabei handelt es sich ausschließlich um Ersetzungsstöße, da ein Atom, bevor es auf das nächste in der Kette trifft, einen Ring von 4 Nachbaratomen zu durchdringen hat, Abb.2. Dieser Ring wirkt auf schräg zur ⟨100⟩-Richtung angestoßene Atome fokussierend, indem er deren Flugrichtung etwas zur Achse lenkt, sodaß das nächste Atom unter einem kleineren Winkel angestoßen wird.

---

*Wegen Bedingung (1.7) verlaufen die reinen SILSBEE - Fokussonen ohne Massetransport.

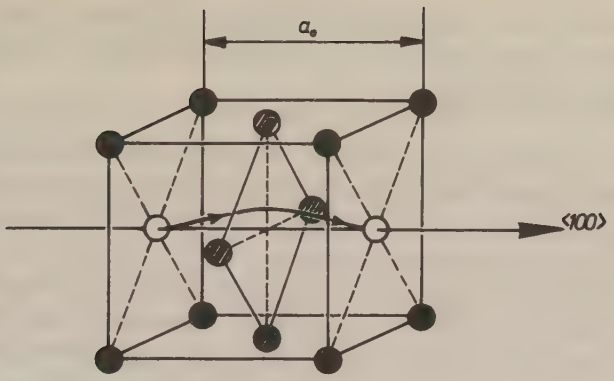



Abb.2: Hilfsfokussierungsrichtung ⟨100⟩ in kubisch-flächenzentrierten Gittern.
$a_o$...Gitterkonstante = $D^{\langle 100\rangle}$

Nach NELSON & THOMPSON /20/ kann man die fokussierende Wirkung der Nachbaratome um die ⟨100⟩-Richtung vergleichen mit einer Linse der Brennweite

$$f = \frac{3}{2}\frac{E}{A}\frac{a^2}{D}\exp\ \frac{3}{4\sqrt{2}}\frac{D^{\langle 100\rangle}}{a} \quad . \tag{1.12}$$

Während direkte Impulsfokussierung stets mit hoher Atompackung in der Kette bei geringem Einfluß der Nachbarreihen verbunden ist, ermöglichen gerade die Nachbaratomreihen korrelierte Stöße in den vergleichsweise locker besetzten Richtungen mit Hilfsfokussierung. Entsprechend hoch sind in letzterem Falle allerdings der Energieverlust pro Stoß und die Existenzgrenze der Stoßfolge /36/,/37/. Die erforderliche Mindestenergie zur Überwindung der Potentialbarriere des Ringes der Nachbaratome ist in grober Näherung

$$E_{1min} = n\,A\,e^{-\frac{L}{a}} \quad . \qquad \begin{matrix} L...\text{Ringradius} \\ n...\text{Anzahl d. Ringatome} \end{matrix} \tag{1.13}$$

Aus diesem Grunde treten Zerstäubungsmaxima in Hilfsfokussierungsrichtungen erst ab etwas erhöhter Projektilenergie auf. Wegen (1.9) nimmt ihre Intensität von den mittleren zu den schweren

Elementen hin ab. Unter besonderen Bedingungen können jedoch ⟨110⟩- und ⟨100⟩-Emissionen durchaus vergleichbar zur Zerstäubung beitragen /38/,/39/,/40/.

Eine bevorzugte Emission in ⟨111⟩-Richtung kubisch-flächenzentrierter Metalle haben NELSON & THOMPSON festgestellt /20/,/24/. Entlang solcher Gittergeraden hat ein Atom zwei Dreier-Ringe zu durchdringen, bevor es auf das nächste in der Kette trifft. Dazu ist z.B. in einem Kupferkristall der (hohe) Energiebetrag von etwa 40 eV erforderlich. Trotz mehrfacher Versuche unter zum Teil verbesserten Versuchsbedingungen konnte ein Emissionsmaximum in ⟨111⟩-Richtung von anderen Autoren nicht bestätigt werden /41/,/42/,/43/.

### 1.3. Anisotrope Emission als Folge der geordneten Oberflächenstruktur

Messungen der Energieverteilung zerstäubter Atome /44/.../51/ zeigen ein ausgeprägtes Maximum im Gebiet der Bindungsenergie und einen Abfall auf der Hochenergieseite, der sich i.a. durch ein Potenzgesetz

$$g(E) \sim E^{-n} \quad \text{mit } \frac{3}{2} \leq n \leq \frac{5}{2} \tag{1.14}$$

beschreiben läßt. Die dominierende Rolle beim Zerstäubungsprozess kommt daher dem niederenergetischen Anteil der Rückstoßatome in der Kaskade zu. Auf diesen übt jedoch eine reguläre Oberflächenstruktur eine stark selektive Wirkung aus, und zwar in zweifacher Hinsicht:

a) für die Ablösung eines Oberflächenatoms muß beim Stoß mindestens die Bindungsenergie $E_b$ übertragen werden. Ob dies der Fall ist, hängt ab von der Energie des Atomes 1 und dessen Flugwinkel $\Theta_1$ zu Verbindungsgeraden (Abb.3a):

$$E_2 = E_1 \cos^2(\Theta_1 + \Theta_2) \quad > E_b \quad \text{für Emission} \tag{1.15}$$

Für eine feste Energie $E_1$ können nur Stöße im Winkelintervall $0 \leq \Theta_1 \leq \Theta_{1max}$

$$\Theta_{1max} = \frac{1}{1+\Lambda} \arccos\sqrt{\frac{E_b}{E_1}} \qquad (1.16)$$

zu einer Emission führen. Damit ist auch der Emissionswinkelbereich nach oben begrenzt:

$$0 \leq \Theta_2 \leq \Theta_{2max} = \Lambda(E_1, \Theta_1) \cdot \Theta_{1max} \quad , \qquad (1.17)$$

so daß eine bevorzugte Emission in einen Kegel mit dem Öffnungswinkel $2\Theta_{2max}$ erfolgt*. Mit steigender Energie $E_1$ wächst dieser Abschneidewinkel, wodurch (1.15) für immer größere Stoßwinkel erfüllt ist. Nimmt man für die Energie des Atomes 1 nicht einen Festwert, sondern ein Spektrum der Form (1.13) an, so läßt sich eine Emissionsverteilung berechnen, deren Halbwertsbreite in der beobachteten Größenordnung liegt.

b) Die der Hilfsfokussierung entsprechende Emission eines Atoms aus der unter der Oberfläche befindlichen Schicht zeigt Abb.3b. Da die Potentialbarriere im Zentrum des zu durchdringenden Ringes ein Minimum besitzt, wird in dieser Richtung ein größerer Anteil aus dem Energiespektrum zur Emission zugelassen - die Emissionsverteilung besitzt im Zentrum des Ringes ein Maximum. Demnach ist auch in diesem Falle eine Impulsfokussierung nicht erforderlich, sondern erhöht lediglich die Anisotropie.

Für beide Emissionsprozesse ist also die diskriminierende Wirkung einer geordneten Festkörperoberfläche eine Folge der starken Bevorzugung des niederenergetischen Anteils im Energiespektrum: im Falle der direkten Emission bedingt die Oberflächenbindungsenergie eine energieabhängige Auslese der zur Zerstäubung beitragenden Stoßwinkel, im Falle der Ringemission filtert die Oberfläche ortsabhängig größere oder kleiner Bereiche aus dem Kaskadenspektrum.

---

* Der Fokussierungsparameter $\Lambda$ ist hier nur als Repräsentant für das Stoßgesetz aufzufassen und hat mit einer Impulsfokussierung in diesem Zusammenhang nichts zu tun.

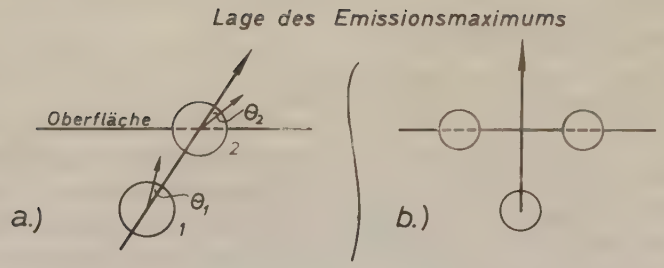



Abb.3: Anisotrope Emission als Folge geordneter Oberflächenstrukturen.

3a: Direkte Emission eines Oberflächenatoms 2 durch Stoß mit Atom 1;

3b: Emission eines Atoms durch ein Potentialminimum der Oberfläche.

Das Oberflächenmodell stellt nicht die Existenz fokussierender Stoßfolgen in Frage, es hält jedoch ihren Einfluß auf die Zerstäubung für gering. Für den Emissionsprozess ist nach SIGMUND /1/ eine Oberflächenschicht von ca. 5 Å verantwortlich. Weiterhin findet er in einer Abschätzung der zur Zerstäubung beitragenden Fokussonenreichweiten, daß Fokussonen mit etwa 10% der maximalen Reichweite 50-80% zur Gesamtausbeute beitragen. In Kupfer wären dies bei Raumtemperatur kaum mehr als 2 Stöße. Mit diesen niedrigen Stoßzahlen läßt sich die beobachtete Anisotropie der Emission nicht erklären.

HARRISON et al./52/,/53/,/54/ simulierten den Zerstäubungsprozess mit Hilfe einer elektronischen Rechenanlage. Dabei zeigte sich, daß allein die 3 oberen Atomlagen Zerstäubungsausbeute und Emissionscharakteristik bestimmen. Leider wurde bei diesen Rechnungen ein Wechselwirkungspotential verwandt, welches die wahren Abstoßungskräfte um ein Vielfaches übertrifft. Ein Großteil dieser Ergebnisse muß daher verworfen werden /55/. Immerhin ist bemerkenswert, daß ein reines "Oberflächenbillard" (WEHNER) quali-

tativ mit dem Experiment übereinstimmende Zerstäubungsmuster hervorbringt.

Eine gewisse Bestätigung fand die erwähnte Hauptaussage dieser Autoren durch unabhängig durchgeführte Maschinenrechnungen von MACDONALD et al./56/,/57/. Unter mehr realistischen Stoßbedingungen erwiesen sich die simulierten Emissionsakte aus Cu - und Ge-Oberflächen bei 1 keV $Ar^+$-Beschuß durchwegs als (Spät-)Folge des ersten Projektilstoßes mit einem Targetatom der oberen Schichten. Fokussierende Stoßfolgen wurden zwar beobachtet, doch verlaufen sie so tief im Kristall, daß ihr Anteil am Zerstäubungsprozess verschwindend gering ist.

## 1.4. Ausgangspunkt der Arbeit

Metallkristallen mit der Struktur hexagonal dichtester Kugelpackung kommt hinsichtlich der Abschätzung des Beitrages fokussierender Stoßfolgen eine besondere Bedeutung zu. An diesen Metallen wurde nämlich zum ersten Mal eine bevorzugte Emission in eine Gitterrichtung festgestellt, die mit Sicherheit keine Impulsfokussierung nach der in 1.2. beschriebenen Weise zuläßt /18/. An der Emissionsverteilung dieser Stoßrichtung - es handelt sich um die $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Emission - ließe sich somit das Oberflächenmodell in seiner reinen Form prüfen. Da hexagonale Metalle andererseits auch Fokussierungsrichtungen aufweisen, kann eine Gegenüberstellung der beiden Zerstäubungsmechanismen an ein und demselben Kristall vorgenommen werden. Bevor darauf näher eingegangen wird, soll jedoch kurz die MILLER-BRAVAIS-Indizierung besprochen werden:

In der vorliegenden Arbeit wird ausnahmslos das 4-achsige Koordinatensystem verwandt. Es steht an Einfachheit den 3-achsigen Aufstellungen nicht nach /58/, hat jedoch den großen Vorteil, daß physikalisch und kristallographisch gleichwertige Gerade und Ebenen sich nur in der Stellung der ersten 3 Indizes bzw. deren Vorzeichen unterscheiden. So sind z.B. die Richtungen $\langle 20\bar{2}3\rangle$, $\langle 2\bar{2}03\rangle$, $\langle 02\bar{2}3\rangle$ usw. für die hier interessierenden Probleme äquivalent. Mit der Angabe einer Gittergeraden ist daher im folgenden stets der Typus der Stoß-

richtung angesprochen. Ferner ist zu beachten, daß i.a. eine Netzebene andere Indizes besitzt als ihre Normale. Nur für die Ebenen(hki0) und (0001) stimmen jeweils Flächen- und Normalindizes überein - gerade auf diese Ebenen fällt auch das Hauptinteresse.

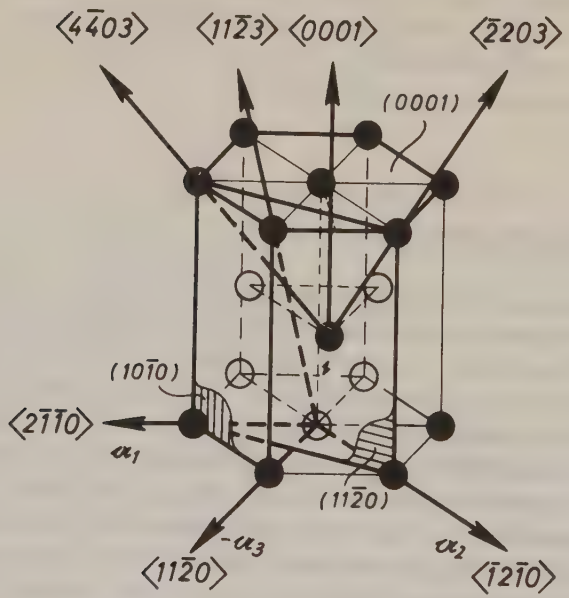



Abb.4: MILLER-BRAVAIS-Indizierung einiger Geraden und Ebenen im Gitter hexagonal dichtester Kugelpackung (hcp).

Ein wesentlicher Unterschied zu kubisch-flächenzentrierten (fcc) Gittern fällt dabei auf: Impulsfokussierung nach SILSBEE kann nur in ⟨11̄20⟩-Richtung erfolgen; diese Gittergeraden liegen jedoch ausschließlich in der (0001)-Ebene, der sog. hexagonalen Haupt- oder Basisebene. Beim Beschuß von (0001)-Oberflächen können folglich Fokussonen keinen Beitrag zur Zerstäubung leisten. Trotzdem beobachtete zuerst PEROVIČ /18/ auf kugelförmigen Auf-

fängern 6 deutlich ausgeprägte Niederschlagsmaxima in ⟨20$\bar{2}$3⟩-Richtung*.

Einen Schnitt durch die (11$\bar{2}$0)-Ebene zeigt Abb.5. Diese Prismenfläche enthält die für die Zerstäubung der (0001)-Ebene maßgebenden Stoßrichtungen. Der Ionenstrahl verläuft hier antiparallel zu ⟨0001⟩. In ⟨20$\bar{2}$3⟩-Richtung liegen jeweils nur 2 Atome in dichtestem Abstand hintereinander, die nächste Zweierkombination auf dieser Linie wird erst wieder nach der 6-fachen Paardistanz erreicht. Eine Impulsfokussierung entlang ⟨20$\bar{2}$3⟩ ist daher undenkbar. HASIGUTI et al./59/ schlugen aus diesem Grunde einen Mechanismus vor, den sie "single event focusing" nannten. Es ist schwer einzusehen, wie danach ein ausgeprägtes Emissionsmaximum entstehen soll. Dieses Konzept wurde später auch nie wieder aufgegriffen.

MOLCHANOV et al./60/ und KOPITZKI et al./44/ ordneten den Emissionsmaxima der (0001)-Ebene nicht die ⟨20$\bar{2}$3⟩, sondern die ⟨11$\bar{2}$3⟩-Richtung zu. Eine Impulsfortpflanzung hat man sich gemäß Abb.6 entlang der einzelnen ⟨20$\bar{2}$3⟩-Teilstücke vorzustellen. Es zeigt sich jedoch (3.2.2.1.), daß die Erfüllung dieser Bedingung einen Emissionsakt ausschließt.

Die bisher ausführlichsten Untersuchungen zur Zerstäubung hexagonaler Metalle wurden 1968 von ROBINSON & SOUTHERN veröffentlicht /34/. Diese Autoren vertreten insofern dieselbe Auffassung wie die vorliegende Arbeit, als die Zerstäubungsmaxima der (0001)-Ebene in erster Linie den Zweierstößen in ⟨20$\bar{2}$3⟩-Richtung zuzuordnen sind /61/.

Damit eröffnen Zerstäubungsmessungen an hexagonalen Kristallen folgende Möglichkeiten:

a) durch Untersuchungen der ⟨20$\bar{2}$3⟩-Emissionsverteilung läßt sich ein Einblick in den Mechanismus des Oberflächenmodells gewinnen.

---

* Die in jener Arbeit angegebene Richtung ⟨1$\bar{1}$03⟩ beruht wohl auf einer Fehlindizierung, da ⟨1$\bar{1}$03⟩ mit ⟨0001⟩ bei Zink einen Winkel von ca. 18° einschließt, in dem beigefügten Stereogramm die Niederschlagsmaxima jedoch knapp über 30° liegen.

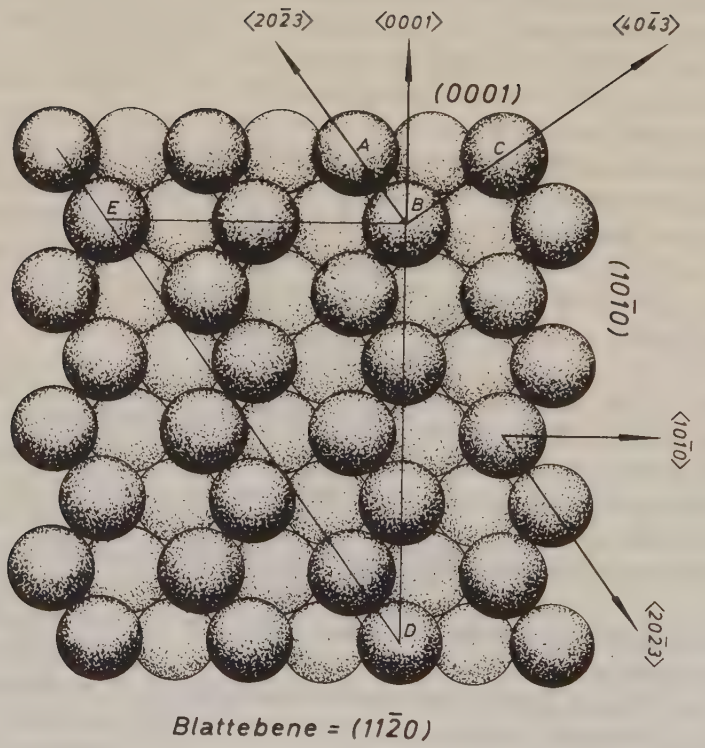



Abb.5: Atomanordnung und Stoßrichtungen in der $(11\bar{2}0)$-Ebene eines idealen hcp-Gitters.

In dieser Ebene liegen die Emissionsmaxima der (0001)-Kristallebene. Zur Beschriftung im Querformat siehe 4.2.2.2.

$\overline{ED} = 6a_o$, $a_o = \overline{AB}$, $\overline{BD} = 2c_o$

b) Untersuchungen der $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Emission sollten weitgehend dieselben Ergebnisse bringen wie $\langle 110\rangle$-Emissionsverteilungen kubisch-flächenzentrierter Metalle. Ein Vergleich dieser beiden Zerstäubungscharakteristiken gestattet eine unmittelbare Gegenüberstellung hcp - fcc;

c) ein Vergleich zwischen einer reinen Zweierstoßrichtung und einer Geraden mit potentieller Impulsfokussierung ist nicht nur an ein und demselben Element, sondern auch an derselben Kristalloberfläche durchführbar.

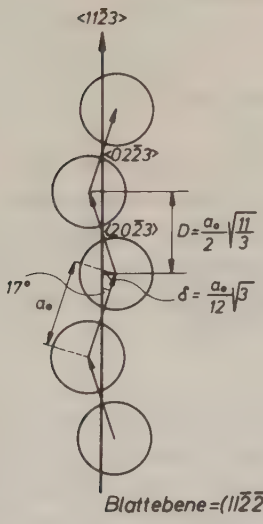



Abb.6:

Impulsfortpflanzung entlang der $\langle 11\bar{2}3\rangle$-Gittergeraden nach FRÈRE

In Tabelle I sind einige Daten zusammengestellt, die in diesem Zusammenhang von Wichtigkeit sind. Die vorliegende Arbeit berichtet in erster Linie über Untersuchungen an den beiden hcp-Metallen Zink und Magnesium. Zu deren kubisch-flächenzentrierten Nachbarelementen Kupfer und Aluminium sind aus der Literatur bereits Ergebnisse bekannt.

| | Struktur | $Z_2$ | $M_2$ | $a_o$ [Å] | $c_o$ [Å] | $T_f$ [°C] | $\Theta_D$ [K] | $E_b$ [eV] | $E_d$ [eV] |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Mg | hcp | 12 | 24 | 3,21 | 5,21 | 650 | 400 | 1,54 | 10;13 |
| Al | fcc | 13 | 27 | 4,05 | - | 658 | 428 | 3,35 | 16 |
| Cu | fcc | 29 | 64 | 3,62 | - | 1084 | 343 | 3,52 | 19 |
| Zn | hcp | 30 | 65 | 2,67 | 4,95 | 419 | 327 | 1,35 | 14;18 |

Tabelle I: Einige wichtige Daten für Zerstäubungsversuche

$Z_2$...Ordnungszahl, $M_2$...Masse in abgerundeten Atomgewichtseinheiten, $a_o$,$c_o$...Gitterkonstante, $T_f$...Schmelztemperatur, $\Theta_D$...Debye-Temperatur, $E_b$...mittlere Oberflächenbindungsenergie, $E_d$...mittlere Schwellenenergie für Verlagerung.

## 2. Experimentelles

### 2.1. Zerstäubungsapparatur

Sämtliche Zerstäubungsexperimente wurden in dem von SCHULZ /43/ gebauten Beschleuniger durchgeführt. Zwar waren im Laufe dieser Arbeit mehrere Abänderungen und Umbauten nötig, doch die Grundkonzeption wurde beibehalten. Es genügt hier daher eine knappe Beschreibung. Abb.7 zeigt schematisch den Aufbau.

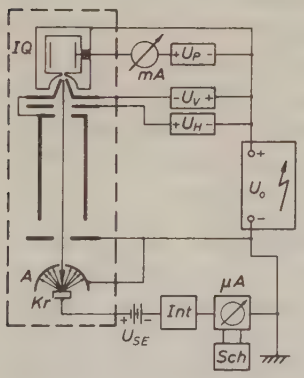



Abb.7

Zerstäubungsapparatur in schematischer Darstellung

IQ...Ionenquelle, A...Auffänger für das zerstäubte Material, Kr...Targetkristall, $U_{SE}$...Sekundärelektronen-Zugspannung, Int...Targetstromintegrator, Sch..Schreiber für d. Targetstrom $U_o$...Beschleunigungsspannung.

Das gewünschte Edelgas wird in einer PEENINGschen Ionenquelle ionisiert. Positive Ionen werden von einer Zugelektrode abgesaugt, durchlaufen, nachdem sie von einer Einzellinse geeignet gebündelt wurden, die Beschleunigungsstrecke, und treffen senkrecht auf die Kristalloberfläche. Das dabei zerstäubte Material wird auf halbzylinderförmig um den Brennfleck gebogenen Kunststoffolien gesammelt. Auf diese Weise gibt die Niederschlagsverteilung (NV) in der den Auffänger nach einem Kreis schneidenden und den Ionenstrahl enthaltenden Ebene eine von geometrischen Verzerrungen freie Abbildung der Emissionsverteilung (EV). Die Auffängerfolien sind in halbe Hohlzylinder eingespannt und diese an eine Schiene geschraubt, welche bis zu 10 solcher Folienhalterungen aufnehmen kann. Diese Folienträgerschiene läuft in einer bis auf -70°C kühlbaren Führungsschiene. Damit lassen sich ohne Vakuumunterbrechung 10 Bestrahlungen nacheinander vornehmen. Der erfaßbare Emissionswinkelbereich beträgt $7^\circ \leqslant \vartheta \leqslant 75^\circ$, die

untere Grenze ist durch die Eintrittsöffnung des Ionenstrahles in den Targetraum bedingt.

Der Ionenstrahl ist unanalysiert, der Anteil der mehrfach ionisierten Atome daher unbekannt. Er kann jedoch als gering angenommen werden, da für mehrfach geladene Teilchen die Fokussierungskriterien des ionenoptischen Systems nicht erfüllt sind und ein Großteil dieser Ionen folglich die Bohrung (Ø=3 mm) der Auffängerhalterung nicht trifft.

Das Target befindet sich auf einem Potential von +32 V (Batteriespannung), um die Ionenstrommessung durch Sekundärelektronenemission nicht zu verfälschen. Diese Spannung sollte ausreichen, um mehr als 90% der negativen Sekundärteilchen am Verlassen des Targets zu hindern /62/,/63/. Durch eine weitere Spannungssteigerung würde vor allem der Anteil der Sekundärelektronen erfaßt, der an Blenden und durch Streustrahlung erzeugt wird, also mit den das Target treffenden Ionen nichts zu tun hat.

Der Targetstrom wird registriert und integriert. Die Kristalltemperatur konnte im Bereich zwischen -175°C bis +97°C variiert werden. In einigen Fällen wurden auch Experimente bei +190°C durchgeführt. Eine Temperatursteigerung über 250°C ist wegen des hohen Dampfdruckes von Magnesium und Zink nicht durchführbar.

Schon nach den ersten Versuchsserien zeigte sich, daß Zerstäubungsmuster der Zink(0001)-Ebene eine deutliche Energieabhängigkeit aufweisen; bei Gold wurde dies nicht beobachtet. Daher war es wünschenswert, die Ionenenergie in dem zur Verfügung stehenden Bereich bei gleichbleibender Strahlqualität (Brennfleckdurchmesser ca. 0,6 mm, Divergenz ca. 2° total) zu variieren. Weiterhin wurde festgestellt, daß Zink - ähnlich verhalten sich auch Magnesium und Kadmium - auf den Kunststoffolien* nur unvollständig kondensiert**. In einem ersten Umbau des Beschleunigers wurde daher

1) das elektrische Versorgungssystem für Ionenquelle und -optik erneuert, so daß im Energiebereich von 10 keV bis 40 keV der Brennfleckdurchmesser am Target bei 0,6 mm lag. Es wurde dabei eine über den angegebenen Querschnitt gleichmäßige Stromdichteverteilung angestrebt;

---

*Agfafol, eine Polycarbonatfolie der AGFA - GEVAERT AG

**siehe 3.2.1. und A.II

2) eine Führungsschiene in den Beschleuniger eingebaut, an welche Rohre für den Durchfluß von flüssigem Stickstoff angelötet waren. Am Ort der Auffängerfolie konnte nach 11stündiger Kühlzeit eine Temperatur von $-120^{\circ}C$ gemessen werden;
3) eine 1000 l/sec Öldiffusionspumpe mit doppelter Dampfsperre eingesetzt; das zweite Baffle wurde dabei mit Hilfe eines Kälteaggregates auf ca. $-40^{\circ}C$ gekühlt. Diese Vorkehrungen brachten nicht nur eine erheblich reduzierte Rückdiffusion des Pumpenöles mit sich, sondern auch eine Verbesserung des Vakuums auf $\lesssim 2 \cdot 10^{-6}$ Torr*. Während des Beschusses stieg der Totaldruck infolge des Edelgaseinlasses in die Ionenquelle auf $6 - 7 \cdot 10^{-6}$ Torr. Der $O_2$-Partialdruck kann damit stets $\lesssim 4 \cdot 10^{-7}$ Torr angenommen werden. Bei Ionenströmen von 15 $\mu$A ergeben sich somit Stromdichten um 5 $mA/cm^2$ und ein Verhältnis von

$$\frac{\text{Ionenbeschußrate}}{O_2\text{-Auftreffrate}} > 10^2$$

im Brennfleck: sobald die Oxidschicht auf der Kristalloberfläche abgetragen ist, sorgt die Zerstäubung für eine stets reine Emissionsstelle.

Mit dieser Anordnung wurden die letzten Zink-Zerstäubungsmessungen und, am Schluß des experimentellen Teiles der Arbeit, sämtliche Aluminium-Experimente durchgeführt. Für die Magnesium - Bestrahlung wurde jedoch eine Einzelauffängerkühlung benutzt. Hierbei wurde nicht die Führungsschiene gekühlt, sondern die Auffängerhalterung selbst. Diese direkte Kühlung erwies sich für die Versuchsdurchführung erheblich einfacher und effektiver - nach Verbrauch von 10 l flüssigem Stickstoff und weniger als einer Stunde Kühlzeit wurde an der Auffängereinspannung eine Temperatur von $-165^{\circ}C$ gemessen. Ein Edelstahlfederbalg ermöglichte eine Verschiebung des gekühlten Auffängers während der Bestrahlung, so daß Strahljustierungen und gelegentliche Vorbestrahlungen ohne Bestäubung der Auffängerfolie vorgenommen werden konnten.

Bei den Magnesium-Bestrahlungen erwies es sich als nötig, den Raum zwischen Kristall und Auffänger während des Zerstäubungsexperi-

*gemessen mit Ionivac 2 der Fa. LEYBOLD - HERAEUS GmbH

mentes abzuschirmen. Das zuerst zerstäubte Magnesium wirkt dann als Getter und sorgt für eine rasche Sauerstoffverarmung. Zerstäubungsmuster, welche unter diesen Bedingungen erzeugt worden waren, unterscheiden sich durch ihren metallischen Glanz deutlich von Niederschlagsverteilungen, die ohne $O_2$-Verarmung zustande kamen. - Während die Auswertung in der Elektronensonde* bei Zink und Aluminium keinen Unterschied zwischen 2 unter sonst gleichen Bedingungen hergestellten Mustern erbrachte, blieb der $O_2$-Partialdruck im Targetraum bei Magnesium nicht ganz ohne Einfluß. Es konnte jedoch sichergestellt werden, daß die Ursache dafür nicht an der Schichtdickenmessung, sondern am Zerstäubungsprozess liegt.

Sämtliche Zerstäubungsmuster, welche für eine Auswertung in der Elektronensonde vorgesehen waren, wurden auf metallischen Auffängern aufgenommen. Für Untersuchungen an Zink-Kristallen wurden Aluminium-Folien verwandt, für Magnesium- und Aluminium-Zerstäubung Kupferfolien. Ihre Stärke betrug 50 µm. Alle diese Folien wurden vor ihrer Bestäubung mit Methanol und Azeton gereinigt - Auffänger, die für Magnesium-Experimente bestimmt waren, wurden zusätzlich noch mit einer ca. 300 Å dicken Kupfer-Schicht überdampft. Niederschlagsverteilungen, welche auf in dieser Weise präparierten und während der Bestäubung tiefgekühlten ($< -150^{\circ}C$) Auffängern erzeugt wurden, zeigten in keinem einzigen Falle einen Hinweis auf Kondensationshemmung.

## 2.2. Auswertung der Zerstäubungsmuster

Ist es gelungen, auf dem Auffänger ein Schichtdickenprofil zu erzeugen, welches verzerrungsfrei die Emissionsverteilung wiedergibt, so muß für die Auswertung die Massenbelegung des zu untersuchenden Metalles ermittelt werden. Dies kann z.B. durch Messung der optischen Transparenz geschehen, da die Intensität des von der dünnen Schicht durchgelassenen Lichtes über einen großen Schichtdickenbereich ein Exponentialgesetz befolgt /64/:

---

*siehe 2.3. und 3.1.

$$I(z) = I(0) \exp - \frac{4\pi}{\lambda} \varkappa z \qquad (2.1)$$

In dieser Beziehung bedeutet I(0) die Intensität des einfallenden Lichtes der Wellenlänge $\lambda$, z die geometrische Schichtdicke der dünnen Schicht und $\varkappa$ den Imagimärteil des komplexen Brechungsquotienten $n^* = n - i\varkappa$. Definiert man analog zur Photometrie eine Schwärzung S, so ist diese der Schichtdicke proportional

$$S(z) \equiv \lg \frac{I(0)}{I(z)} \sim z \ , \quad \text{solange } \frac{d\varkappa}{dz} = 0 \ . \qquad (2.2)$$

Mit Hilfe eines Mikrophotometers kann auf diese Weise sehr einfach die Emissionsverteilung bestimmt werden. Die Anwendbarkeit dieses Schichtdickenmeßverfahrens wird jedoch durch die folgenden Bedingungen stark eingeschränkt:

a) die optischen Konstanten $n, \varkappa$ sehr dünner Schichten hängen empfindlich von Schichtdicke und Herstellungsbedingungen ab /65/,/37/. Da sich das Verhältnis von Bestäubungsrate zu Restgasbombardement von Punkt zu Punkt am Auffänger ändert, sind gerade auf Niederschlagsmustern die Herstellungsbedingungen nicht konstant. Insbesondere Oxidbildung verhindert den Einsatz des optischen Verfahrens, da viele Metallschichten ihre Transparenz durch Oxydation erhöhen;

b) zur Ermittlung von I(z) nach (2.1) muß das Reflexionsvermögen R der dünnen Schicht über den gewählten Dickenbereich konstant bleiben. R ist jedoch ebenfalls schichtdickenabhängig - darauf beruht die Auswertungsmethode von CHAPMAN & KELLY /66/ - sowie durch Herstellungsbedingungen beeinflußbar;

c) als Auffänger muß optisch transparentes Material (Kunststoff, Glimmer, Glas) verwendet werden. Eine Tiefkühlung wird dadurch weitgehend unmöglich.

Trotz dieser offenkundigen Nachteile wurden die ersten Zink-Zerstäubungsmuster auf Kunststoffauffängern gewonnen und durch Photometrie die Emissionsverteilungen zu ermitteln versucht. Durch systematische Variation von Ionenstromstärke und -dosis konnte erwartet werden, daß sich Oxydationseffekte erfassen lassen. Als sich jedoch herausstellte, daß die Auffängerkühlung bis $-70^{\circ}$C

für eine vollständige Kondensation des zerstäubten Materials nicht ausreichte, mußte zugleich mit dem Übergang auf tiefgekühlte Metallauffänger das Auswertungsverfahren geändert werden.

## 2.3. Elektronensonde

In Abschnitt 2.2. wurde festgestellt, daß die Zuordnung einer Emissionsverteilung zu einer gemessenen Niederschlagsverteilung verfälscht werden kann durch

O x y d a t i o n und
u n v o l l s t ä n d i g e K o n d e n s a t i o n.

Bei den Metallen Magnesium, Zink und Kadmium treten beide Störeffekte gemeinsam auf. Für die übrigen hexagonalen Strukturen sind nur sehr wenige Daten über Strahlenschädigung, Zerstäubung und atomare Wechselwirkungspotentiale bekannt /67/. Ein Ausweichen auf eines dieser Elemente hätte spätere Interpretationen auf eine zu unsichere Basis gestellt und schied daher aus. Auch die unmittelbare Nachbarschaft zu den vergleichsweise gut untersuchten fcc-Metallen Aluminium und Kupfer wäre dadurch verloren gegangen. Untersuchungen zur Emissionscharakteristik hexagonaler Kristalle konnten somit nur dann mit Aussicht auf Erfolg fortgeführt werden, wenn ein Meßverfahren einsetzbar war, welches

a) die Massenbelegung dünner Schichten unabhängig von deren chemischer Beschaffenheit zu ermitteln erlaubt; und
b) als Schichtträger auch Metalle zuläßt.

Für eine Reihe von Elementen kann hierfür ein autoradiographisches Verfahren herangezogen werden, Magnesium und Zink gestatten die Anwendung dieser Methode wegen ihrer niedrigen Neutronenaktivierungsquerschnitte und/oder kurzen Halbwertszeiten der β-instabilen Nuklide leider nicht.

Als weitere elementspezifische Meßgröße bietet sich charakteristische Röntgenstrahlung der dünnen Schicht an. Gemessen wird hierbei die Intensität der entsprechenden K- oder L-Linie als Funktion der Schichtdicke. Zur Anregung können sowohl energiereiche Elektronen /68/,/69/ als auch Röntgenstrahlung /70/ verwandt werden. Für leichtere Elemente ist jedoch wegen des höheren Anregungsquerschnittes die Elektronenstoßmethode vorzuziehen /71/,/72/. Nach einigen erfolgversprechenden Vorversuchen an der

Elektronenmikrosonde des Institutes für Allgemeine und Angewandte Geologie und Mineralogie der Universität München* fiel die Entscheidung schließlich auf dieses Anregungsverfahren.

Im Rahmen einer Diplomarbeit baute WEBER /73/ eine Elektronensonde (ES) auf und führte erste Eichmessungen durch. Die Funktionsweise der Meßapparatur in der zuletzt angewandten Form ist in Abb.8 dargestellt.

Ein in einer modifizierten Fernfokus-Elektronenquelle /74,/75/ erzeugter Elektronenstrahl trifft nach Passieren einer Molybdänblende B1 (Ø=500 um) senkrecht auf die Meßschicht. Wird die Anregungsspannung $U_0$ genügend hoch gewählt, so erzeugen die energiereichen Elektronen neben dem Bremskontinuum auch charakteristische Röntgenstrahlen des zu vermessenden Elementes. In der 50 µm dicken Trägerfolie Tr werden sie schließlich zur Gänze abgebremst. Diese in der Probe (=Meßschicht + Träger) verbleibenden Elektronen bilden den sog. Probenstrom $I_P$. Er unterscheidet sich vom Sondenstrom $I_S$ durch den Anteil der Sekundär- und Rückstreuelektronen (Indizes: SE, RE)

$$I_P = I_S - I_{RE} - I_{SE} \qquad (2.3)$$

Mit Hilfe eines Elektrometers kann der Probenstrom gemessen und integriert werden.

Unter einem Winkel von 30° zur Oberflächennormalen tritt ein Teil des in der Probe erzeugten Röntgenspektrums in ein Röntgen-Kristallspektrometer ein. Detektor D, Analysatorkristall AKr und der Vorkollimator $K_2$ sind auf den BRAGG-Winkel der intensivsten Röntgenlinie eingestellt. Die vom Detektor registrierten Quanten stammen infolge der Wellenlängendispersion überwiegend von Anregungsprozessen des gewünschten Energieniveaus. Nur ein sehr geringer Teil des Bremsspektrums gelangt auf diese Weise in den Detektor; trotzdem macht dieser verbleibende Rest mehr als 80% des Untergrundes aus. In jedem Falle wurde daher versucht, die Intensität des Bremskontinuums so niedrig wie möglich zu halten.

---

*Herrn Univ.-Doz. Dr. D. KLEMM möchte ich für die Ermöglichung dieser Messungen hiermit meinen Dank aussprechen.

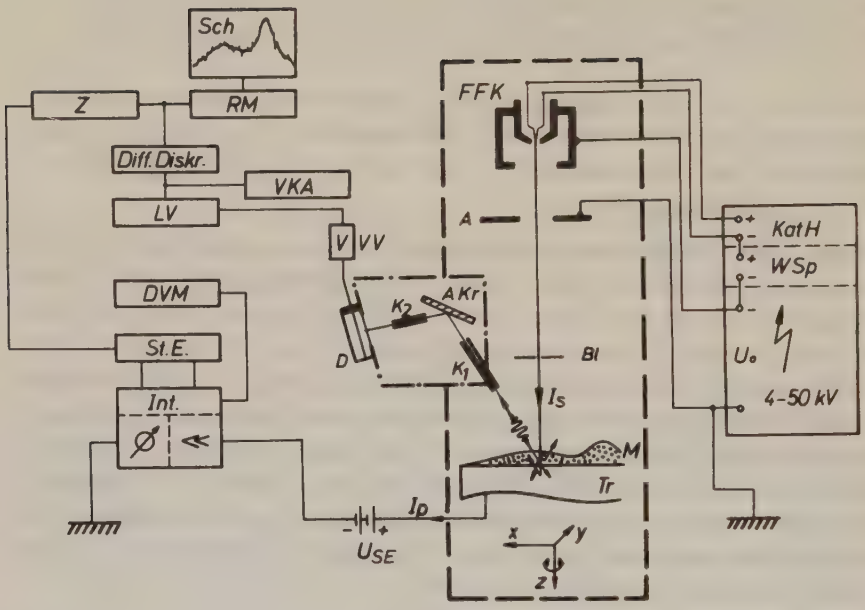



Abb.8: Elektronensonde in schematischer Darstellung

FFK...Fernfokuskathode, A...Anode, Bl...Blende Meßschicht M + Träger Tr ≡ Probe, $K_1$...Hauptkollimator, $K_2$...Vorkollimator, AKr...Analysatorkristall, VV...Vorverstärker, LV...Linearverstärker, D...Detektor, Diff.Diskr...Differentialdiskriminator, VKA...Vielkanalanalysator, Z...Zähler, RM...Ratemeter, Sch...Schreiber, StE...Steuereinheit, DVM...Digitalvoltmeter, Int...Integrator, $U_{SE}$...Sekundärelektronenzugspannung, KatH...Kathodenheizung, WSp...Wehneltspannung, $U_O$...Anregungsspannung.

Durch Verwendung von Trägerfolien niedriger Ordnungszahl (z.B. Al) und nicht zu hoher Anregungsspannung ließ sich dies i.a. auch erreichen.

Das vom Detektor abgegebene Impulshöhenspektrum wird verstärkt (ladungsempfindlicher Vorverstärker VV, Linearverstärker LV) einem Einkanal-Impulshöhendiskriminator zugeführt. Impulse im

interessierenden Energiebereich werden von diesem als Logiksignale an einen Digitalzähler sowie an einen Mittelwertmesser weitergeleitet, dessen analoge Ausgangssignale einen Y-t-Schreiber aussteuern.

Die Detektorwahl hängt von der Energie der zu messenden Strahlung ab. Für die weichen MgK- und AlK-Quanten kommen nur Durchflußzählrohre in Frage. Im Gebiet der CuK- und ZnK-Strahlung können sowohl abgeschmolzene Proportionalzählrohre mit Xe-Füllung als auch NaJ(Tl)-Szintillationszähler eingesetzt werden. Tabelle II gibt eine Zusammenstellung der verschiedenen zur Schichtdikkenmessung verwendeten Quantenenergien, Analysatorkristalle und Detektoren.

| Meßschicht | verwendete Strahlung: Linie | Quantenenergie [keV] | Absorptionskante [keV] | Analysatorkristall | Detektor: Art | FWHM % | Wirkungsgrad % | Träger |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Mg | $K_\alpha$ | 1,25 | 1,30 | AdP | 90% Ar + 10% $CH_4$ Durchfluß-Zählrohr | 34 | 65 | Al |
| Al | $K_\alpha$ | 1,48 | 1,56 | AdP | 90% Ar + 10% $CH_4$ Durchfluß-Zählrohr | 34 | 70 | Cu |
| Ag | $L_{\alpha_1}$ | 2,98 | 3,81 | NaCl(100) | 90% Ar + 10% $CH_4$ Durchfluß-Zählrohr | 30 | ca 45 | Al, Au |
| Cu | $K_{\alpha_1}$ | 8,05 | 8,98 | LiF(100) | Xe - gefülltes Proportional-Zählrohr | 20 | 70 | Cu |
| Zn | $K_{\alpha_1}$ | 8,64 | 9,66 | LiF(100) | Xe - gefülltes Proportional-Zählrohr | 20 | 70 | Al |

Tab.II: Zusammenstellung der verwendeten Analysatorkristalle, Detektoren und Trägerfolien sowie einiger wichtiger Daten

Man könnte meinen, die Verwendung eines Röntgenkristallspektrometers würde eine Impulshöhenanalyse erübrigen. Tatsächlich werden Elektronenmikrosonden häufig mit Integraldiskriminatoren betrieben. In dem hier vorliegenden Falle bestimmt jedoch der Untergrund entscheidend die Empfindlichkeit des Verfahrens: auf die Rolle des Bremsspektrums wurde bereits hingewiesen; weitere Ursachen für Störimpulse sind

a) elektronisches Rauschen und Einstreuungen;
b) kohärente sowie inkohärente Streustrahlung vom Analysatorkristall;
c) höhere Beugungsordnungen;
d) Fluoreszenzstrahlung des Analysatorkristalles.

Außer Punkt a) lassen sich diese den Untergrund erhöhenden Effekte nur durch Differentialdiskriminatoren reduzieren. In 3.1.2. wird darauf noch ausführlich eingegangen.

Der Probentisch ist in 2 orthogonalen Richtungen (x,y) verschiebbar und in jeder Stellung um eine zum Elektronenstrahl parallele Achse drehbar. Die Einstellreproduzierbarkeit liegt in x-Richtung bei $\pm$0,07 mm, in y-Richtung beträgt sie $\pm$0,15 mm. Winkeleinstellungen konnten mit einer Genauigkeit von $\pm 1/10^{\circ}$ vorgenommen werden.

Zur Vermessung eines Zerstäubungsmusters wurde die bestäubte Folie nach Entnahme aus der halbzylinderförmingen Einspannung gerade gebogen und mit Hilfe einer Maske an dem Probentisch festgespannt. Die Oberseite dieser Maske war mit einem fluoreszierenden Überzug versehen und ermöglichte auf diese Weise eine bequeme und genaue Justierung der Folie unter dem Elektronenstrahl. Mit Hilfe der Drehbewegung und des y-Vorschubs wurde dabei die Vermessungslinie in x-Richtung der Elektronensonde ausgerichtet. Bis auf wenige Ausnahmen war die Vermessungslinie stets identisch mit der Schnittgeraden zwischen Auffänger und Azimutalebene des Metallkristalles (d.i. die Gitterebene des Kristalles, in welcher die Emissionsverteilung auf dem zylinderförmigen Auffänger verzerrungsfrei wiedergegeben wird). In Abb.9 ist diese Zuordnung der Aufstellungen in Beschleuniger und Elektronensonde dargestellt. Tabelle III gibt eine Zusammenfassung aller untersuchten Magnesium- und Aluminium-Kristalle sowie deren azimutale Orientierung bezüglich des Auffängers. Da hier räumliche Verhält-

nisse interessieren, sind die Indizes diesmal auch bezüglich Stellung und Vorzeichen exakt angegeben.

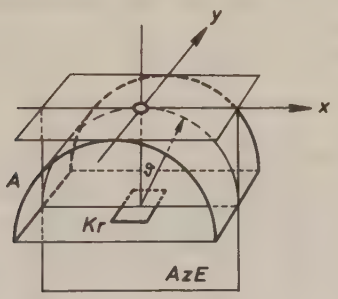



Abb.9: Aufstellung des Auffängers A bezüglich des Targetkristalles Kr.
AzE...Azimutalebene (verzerrungsfreie Abbildung)
$\vartheta$...Polarwinkel der Emission
x,y...Koordinatensystem in der Elektronensonde

Die ersten Vermessungen von Zink-Zerstäubungsmustern in der zu diesem Zeitpunkt noch nicht-dispersiv* arbeitenden Elektronensonde wurden auf folgende Weise durchgeführt: ein Motor trieb die Probe in x-Richtung vor, gleichzeitig registrierte ein Zweikanalschreiber die mittlere Impulsrate und den Probenstrom. - Diese Methode erwies sich jedoch als zu unempfindlich und wegen der erforderlichen hohen Sondenstromkonstanz zu störanfällig. Aus diesem Grunde wurde an die Elektronensonde ein Röntgenkristallspektrometer angebaut**, wodurch eine erheblich bessere Diskriminierung des Untergrundes erreicht wurde.

*genauer: nicht-wellenlängendispersiv

**hierfür wurde ein Spektrometerkanal einer Mehrkanal-Röntgenfluoreszenzanlage (MRS 1T der Fa. SIEMENS) für den Einsatz unter Hochvakuumbedingungen umgebaut.

Tabelle III

| Kristall-oberfläche | Azimutalebene mit den Indizes | enthält die Gittergeraden mit den Indizes | unter dem Polarwinkel |
|---|---|---|---|
| (0001) Mg | $(11\bar{2}0)$ | $\langle 0001\rangle$ | $0^\circ$ |
| | | $\langle \bar{2}203\rangle$ | $35{,}3^\circ$ |
| | | $\langle \bar{4}403\rangle$ | $54{,}7^\circ$ |
| | | $\langle \bar{1}100\rangle$ | $90^\circ$ |
| $(10\bar{1}0)$ Mg | (0001) | $\langle 10\bar{1}0\rangle$ | $0^\circ$ |
| | | $\langle 11\bar{2}0\rangle$ | $30^\circ$ |
| | | $\langle \bar{1}2\bar{1}0\rangle$ | $90^\circ$ |
| | $(\bar{1}2\bar{1}0)$ | $\langle 10\bar{1}0\rangle$ | $0^\circ$ |
| | | $\langle 40\bar{4}3\rangle$ | $35{,}3^\circ$ |
| | | $\langle 20\bar{2}3\rangle$ | $54{,}7^\circ$ |
| | | $\langle 0001\rangle$ | $90^\circ$ |
| $(11\bar{2}0)$ Mg | (0001) | $\langle 11\bar{2}0\rangle$ | $0^\circ$ |
| | | $\langle \bar{1}2\bar{1}0\rangle$ | $60^\circ$ |
| | | $\langle \bar{1}100\rangle$ | $90^\circ$ |
| $(36\bar{9}8)$ Mg | $(\bar{3}30\bar{2})$ | $\langle 24\bar{6}3\rangle$ | $0^\circ$ |
| | | $\langle 11\bar{2}0\rangle$ | $30^\circ$ |
| | | $\langle 02\bar{2}3\rangle$ | $30^\circ$ |
| | | $\langle \bar{2}023\rangle$ | $90^\circ$ |
| (111) Al | $(1\bar{1}0)$ | $\langle 111\rangle$ | $0^\circ$ |
| | | $\langle 110\rangle$ | $35{,}3^\circ$ |
| | | $\langle 001\rangle$ | $54{,}7^\circ$ |
| | | $\langle \bar{1}\bar{1}2\rangle$ | $90^\circ$ |

= x - Richtung in Elektronensonde
= Schnitt: Oberfläche - Azimutalebene

Tabelle IV. Charakteristische Daten des Röntgenspektrometers

Analysatorkristalle:
eben
alle vakuumbeständigen Kristalle einsetzbar

Glanzwinkelbereich:
$5^{\circ} \leq 2\vartheta \leq 145^{\circ}$

Detektoren:
Durchflußzählrohre, abgeschmolzene Proportionalzählrohre und NaJ-Szintillationszähler hochvakuumdicht anflanschbar. Damit erfaßbarer Elementbereich: $9 \leq Z \leq 92$.
Detektorwinkeleinstellung auf $\pm 0{,}3^{\circ}$ genau und von Analysatorstellung unabhängig

Kollimatoren:
Hauptkollimator $0{,}6^{\circ}$ Öffnungswinkel
Vorkollimator $0{,}4^{\circ}$ "

Vakuumtauglichkeit:
Enddruck im Spektrometer: $2 \cdot 10^{-5}$ Torr
Enddruck gleichzeitig in der Meßkammer: $3 \cdot 10^{-6}$ Torr

Feineinstellung:
Analysatorkristall und beide Kollimatoren unter Hochvakuum justierbar

Um den Einfluß von Strahlstromschwankungen auszuschalten, wurde der Probenstrom integriert und die Impulszahl auf die Ladungseinheit bezogen. Zu diesem Zwecke wurde ein ladungsproportionales Ausgangssignal des Integrators einer Steuereinheit zugeführt, welche bei einem vorgebbaren Ladungswert den Meßvorgang beendete. Diese Steuereinheit*, Abb.10, besteht im wesentlichen aus einem SCHMITT-Trigger mit verstellbarer Schaltschwelle, gefolgt von einem Flip-Flop, dessen Hauptfunktion darin besteht, Zähler und Integrator zu schalten sowie den Integrationskondensator vor Beginn einer neuen Messung zu entladen.

* Den Herren Dipl-Phys. H. GREDEL und Dipl-Ing. D. COMBECHER danke ich für vielfache Hilfe bei elektronischen Problemen.

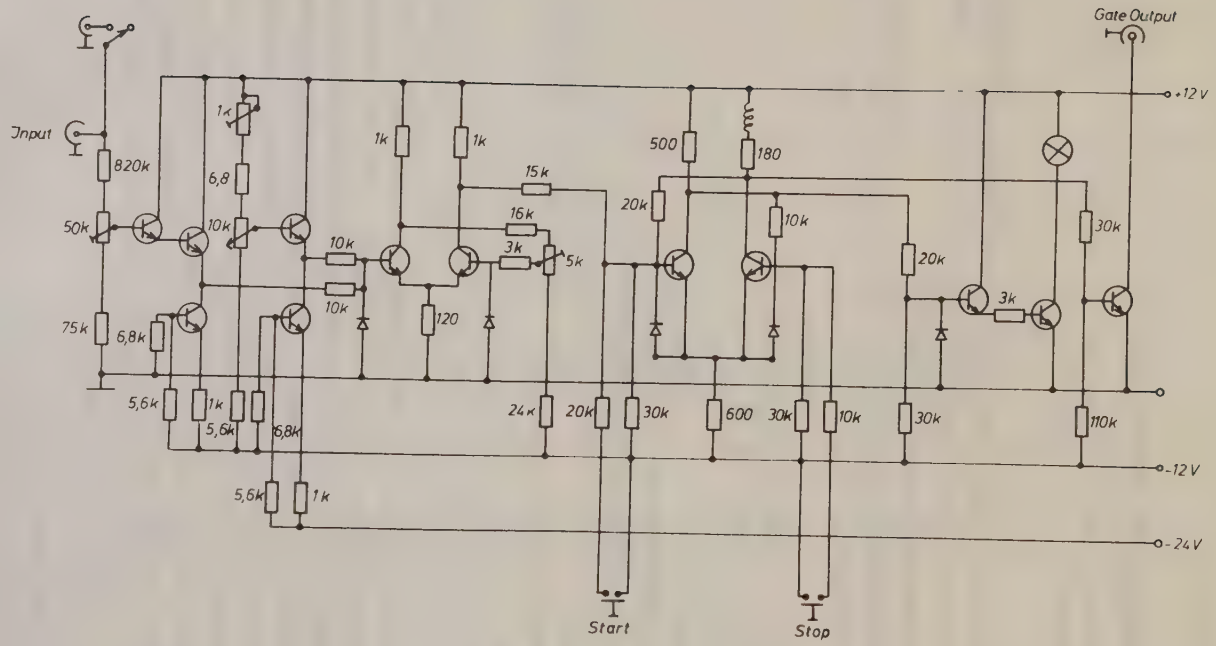



Abb.10: Steuereinheit zur Schaltung des Impulszählers und des Integrators.
Alle Transistoren : 2N 3568 Alle Dioden: 1N 4148

Bei Probenstromstärken von 200 bis 250 nA wurden für einen Meßpunkt etwa 45 sec benötigt. Ein Einfluß einer Probenkontamination durch Ausbildung von Kohlenwasserstoffpolymerisatschichten konnte selbst nach 10-fach längerer Beschußzeit nicht festgestellt werden *.

## 2.4. Herstellung der Eichschichten

Es ist zur Zeit noch nicht möglich, die Röntgenausbeute in Abhängigkeit von der Schichtdicke aus der Elektronenstreutheorie für die beabsichtigten Messungen genügend genau zu berechnen. Die Eichung der Elektronensonde wurde aus diesem Grunde auf empirischem Wege mit Hilfe von Aufdampfschichten vorgenommen.

In einer konventionellen Aufdampfanlage wurde die Verdampfung des zu untersuchenden Elementes durchgeführt. Als Verdampfungsquellen dienten wechselstromgeheizte Wolfram- oder Molybdänschiffchen. Die Trägerfolien waren in einer Metallmaske eingespannt und konnten durch ein bewegliches Metallplättchen abgedeckt werden. Dadurch wurde ein Teil der Folie bedeckt, während der andere der Bedampfung ausgesetzt war. Diese Vorrichtung ermöglichte die Herstellung einer 10-stufigen Schichtdickentreppe in einem Bedampfungszyklus. Ein Schwingquarz-Schichtdickenmeßgerät kontrollierte die Massenbelegung während dieser Zeit. Zur Eichung des Schwingquarzes wurde die Vielstrahlinterferenzmethode nach TOLANSKY /76/ verwandt. Wie Abb.11 zeigt, läßt sich die Eichkurve in sehr guter Näherung durch eine Gerade beschreiben. Es genügt daher, die interferometrische Eichung für Schichtdicken $z > 300$ Å durchzuführen und die Gerade zu kleineren Werten hin zu extrapolieren. Schichten ab etwa 300 Å weisen eine ausreichend große Wellenlängenverschiebung im Interferenzmikroskop auf, so daß eine sichere Vermessung (10 - 15%) gewährleistet ist. Unterhalb dieser Dicke wird die TOLANSKY-Methode nicht nur mühsam, sondern auch zunehmend unrichtig: die Rauhigkeit sehr dünner Schichten täuscht

*Eine 950 Å dicke Mg-Referenzschicht, welche über einen Zeitraum von etwa 10 Monaten als Kontrollwert stets mitgemessen wurde, und daher zuletzt über die gesamte Fläche mit Spuren von Elektronenstrahlbrennflecken bedeckt war, zeigte keine Änderung der Impulsausbeute.

eine zu große Schichtdicke vor /78/,/79/,/80/. Im Falle von Silberschichten beträgt diese systematische Abweichung 60 Å bis 100 Å /79/.

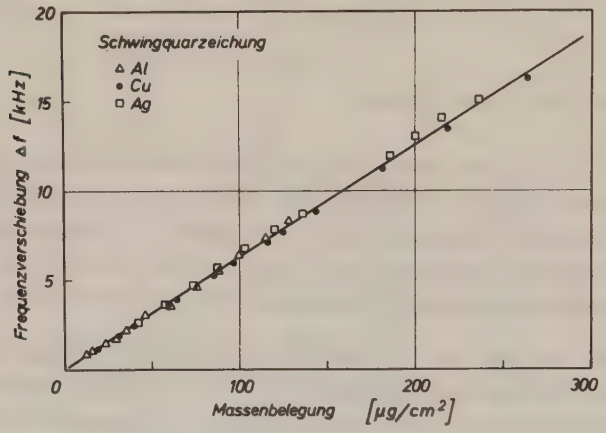



Abb.11: Eichung eines Schwingquarzes zur Schichtdickenmessung dünner Metallaufdampfschichten.

Mit dieser Methode gelang es ohne Schwierigkeiten, Kupfer- und Silberschichten im Bereich zwischen 30 Å bis 10 000 Å herzustellen. Die untere Grenze bei beiden Metallen entspricht einer Massenbelegung von etwa 3 $\mu g/cm^2$. Sie liegt somit um etwa 3 Größenordnungen über der von SAUERBREY /77/ angegebenen Grenzempfindlichkeit der Schwingquarze.

Aluminiumbedampfungen erfordern im Vergleich zu Silber hohe Verdampfungstemperaturen (etwa 1400°C), da dieses Metall am Schmelzpunkt erst einen Dampfdruck von $10^{-8}$ Torr besitzt. In diesem Fall machte sich bereits die Temperaturabhängigkeit der Schwingquarzeigenfrequenz unangenehm bemerkbar. Aus diesem Grunde wurde eine kühlbare Schwingquarzfassung gebaut, welche mittels eines Ultrathermostaten auf 25°C gehalten werden konnte. Bei dieser Temperatur besitzen gute AT-geschnittene Quarze einen Temperaturkoeffizienten der Eigenfrequenz um $10^{-6}$ $grd^{-1}$. Damit konnte der Einfluß der Temperaturstrahlung deutlich reduziert werden.

Magnesium- und Zink-Schichten konnten wegen ihrer Kondensationshemmung* nach dem oben beschriebenen Verfahren leider nicht hergestellt werden. Bei diesen Metallen ist eine Tiefkühlung des Substrates erforderlich. Sie wurde mit Hilfe der in Abb.12 skizzierten Vorrichtung erreicht. Eine mitgekühlte Blende Bl sollte den nicht auf den Kühlblock gelangenden Teil des Atomstrahles abfangen und somit unkontrollierbare "Vielfachreflexionen" an den Wänden des Rezipienten vermeiden. Der Schieber S gab die Substratbedampfung erst frei, nachdem das Schiffchen Sch Endtemperatur erreicht hatte. An der Oberfläche des Kühlblockes waren Heizleitungen angebracht, welche sowohl die Einstellung von Zwischentemperaturen für eventuelle Kondensationsexperimente gestatteten, als auch für eine rasche Wiedererwärmung der bedampften Folien sorgten. - Mit dieser Anordnung konnten einwandfreie, homogene Magnesium- und Zink-Schichten auf den Trägerfolien aufgebracht werden.

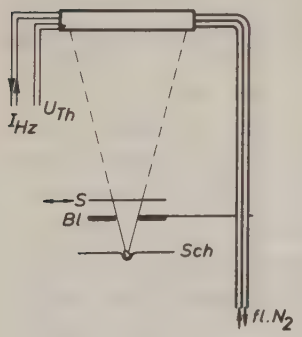



Abb.12:

Substratkühlvorrichtung zur Herstellung von Mg- und Zn-Eichschichten in einer Aufdampfanlage.

Auch die Ermittlung der Schichtdicken von Magnesium und Zink machte Schwierigkeiten. Aluminium, Kupfer und Silber kondensieren auf Glas- und Metallträgern bei Raumtemperatur gleich gut. Vielfachinterferenzmessungen können daher auf gläsernen Auffängern vorgenommen werden, welche wegen ihrer geringeren Oberflä-

*siehe A.II

chenrauhigkeit für die Vermessung günstiger sind. Bei Magnesium und Zink ist dies wegen der unterschiedlichen Kondensation nicht möglich, weshalb die Vermessung auf den in der Elektronensonde verwendeten Metallträgern selbst durchgeführt werden mußte. Die damit gewonnenen Schichtdickenwerte der Eichschichten sind dadurch erheblich gröber. Im Einzelnen wurde bei Zink und Magnesium unterschiedlich verfahren:

die Zink-Eichung beruht auf Überlegungen zur Elektronenstreuung und wird daher in 3.1.2.1. beschrieben;

für Magnesium wurde ein chemisches Verfahren* angewandt. Dazu wurde auf den Trägerfolien ein Magnesium-Niederschlag definierter Fläche aufgebracht; nachdem die Impulsausbeute dieser Schicht in der Elektronensonde bestimmt worden war, wurde der Mg-Belag in 0,4n HCl aufgelöst und die Mg-Konzentration mit Hilfe der Atomabsorptionsmethode** bestimmt /81/. Die dünnste Mg-Schicht betrug 73 Å entsprechend einer Mg-Konzentration von 300 µg/l. Die Nachweisgrenze dieses Verfahrens liegt unter 100 µg/l, die Fehlergrenze wird mit ±5% angegeben. Gegenüber dem TOLANSKY-Verfahren mißt man mit der Atomabsorptionsmethode somit sowohl genauer als auch empfindlicher.

---

*Herrn Dr. H. ROHLEDER und Herrn Ing.(grad.) V. DIETL danke ich für die freundliche Beratung sowie die sorgfältige Durchführung des chemischen Teiles der Messungen.

**gemessen wurde die Absorption der 2852 Å - Spektrallinie entsprechend dem Übergang $3\,p\,{}^1P_1^o \longrightarrow 3s^2\,{}^1S_o$

## 2.5. Kristallpräparation

Da beim Zerstäubungsprozess die Emission der Atome aus den oberen Atomlagen erfolgt, müssen die Kristalle möglichst zerstörungsfrei bearbeitet werden. Für Zink und Magnesium bieten sich hierfür verschiedene Verfahren an:

Zink(0001)-Kristalloberflächen lassen sich durch Spaltung gewinnen. Zerstäubungsmuster, welche von solchen Kristallen gewonnen wurden, unterscheiden sich keineswegs nachteilig von Niederschlagsverteilungen elektropolierter Kristalle. Ungünstiger hingegen ist eine Oberflächenbearbeitung durch Funkenplanieren; dies ist sowohl an den Zerstäubungsmustern als auch an LAUE-Beugungsaufnahmen deutlich zu erkennen. Eine Nachbehandlung ist in diesem Falle unvermeidbar.

Magnesium-Kristalloberflächen wurden für 4 verschiedene Orientierungen hergestellt. Das Präparationsverfahren war in allen Fällen das gleiche: die gewünschte Kristallorientierung wurde durch LAUE-Beugungsaufnahmen gewonnen, der Kristall mit Hilfe einer Funkensäge geschnitten und nach neuerlichen Kontrollaufnahmen funkenplaniert. Die damit erhaltene Oberfläche weicht von der angestrebten Orientierung nicht mehr als $2^{o}$ ab*. Diese Unsicherheit ist ebenso groß wie eine mögliche Fehljustierung des Kristallplättchens in der Zerstäubungsapparatur. Bei symmetrischen Zerstäubungsmustern konnten feinere Korrekturen der Kristallaufstellung noch nachträglich im Beschleuniger vorgenommen werden.
Alle Mg-Kristalle wurden nach dem Funkenplanieren chemisch poliert. Hierfür wurde ein Glasfaserfilter mit 2%-iger Salzsäure getränkt und der Kristall ohne Druck über dem Filter bewegt. Nach Abtragung von mindestens 0,2 mm unterbrach eine Spülung in destilliertem Wasser den Polierprozess. - Mit Hilfe dieses Verfahrens konnten spiegelblanke, metallisch hellglänzende Mg-Oberflächen erzielt werden.

---

*Herrn Dr. D. WOLF, Institut für Kristallographie und Mineralogie der Universität München, danke ich für seine Hilfe bei Kristallorientierungen.

Sämtliche Kristalle wurden nach der abschließenden Oberflächenbehandlung 1 1/2 - 2 Stunden im Hochvakuum getempert, Zink bei einer Temperatur von 200°C, Magnesium bei etwa 280°C.

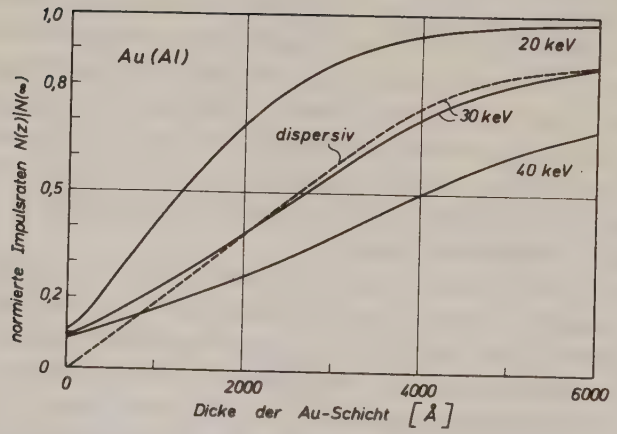



Abb.13: Abhängigkeit der Impulsrate dünner Gold-Schichten von der Schichtdicke bei Elektronenbeschuß

Nicht-dispersive Messung, Einstellung des Differentialdiskriminators auf die AuL-Linie. Normierung auf die Impulsrate einer "unendlich dicken" Au-Probe.

Kurvenparameter: Elektronenanregungsenergie
Strichlierte Kurve: dispersive Vergleichsmessung an einer Elektronenmikrosonde

Nach WEBER /73/.

## 3. Meßergebnisse

### 3.1. Schichtdickenmessung mit Hilfe der Elektronensonde

#### 3.1.1. Nicht-dispersive Messung

In 2.3. wurde bereits darauf hingewiesen, daß die Elektronensonde zunächst ohne Röntgenspektrometer betrieben wurde, d.h. die von der Probe emittierte Röntgenstrahlung fiel direkt auf den Detektor. Mit diesem Gerät untersuchte WEBER /73/ die Schichtdickenabhängigkeit der Intensität charakteristischer Röntgenstrahlung an den Elementen Aluminium, Kupfer und Gold. Abb.13 ist dieser Arbeit entnommen. Man erkennt, daß mit steigender Anregungsspannung das Einmünden der Kurven in den Sättigungswert der unendlich dicken Probe $N(\infty)$ zu immer größeren Schichtdicken hin verschoben wird. Damit kann der erfaßbare Dickenbereich durch Variation der Elektronenenergie der jeweiligen Problemstellung angepaßt werden. Weiterhin ließen die Ergebnisse den Schluß zu, daß die Meßempfindlichkeit für Schichtdicken $z < 2000$ Å wesentlich durch den Untergrund $N(0)$ beeinflußt wird. Vergleichsmessungen an einer dispersiv arbeitenden Elektronenmikrosonde bestätigten dies (strichlierte Kurve in Abb.13).

Ein ebenfalls der Arbeit von WEBER entnommenes und für das Weitere sehr wichtiges Ergebnis zeigt Abb.14.

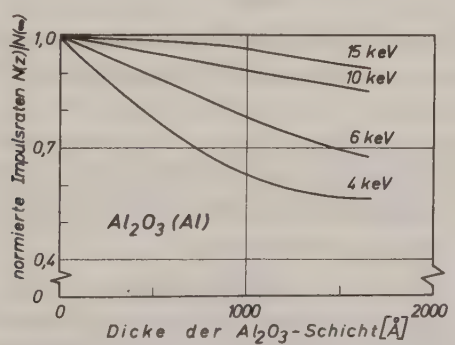



Abb.14: AlK-Impulsraten massiver Aluminium-Proben in Abhängigkeit von der Dicke dünner $Al_2O_3$-Deckschichten.
Nicht-dispersive Messung; Kurvenparameter: Anregungsenergie der Elektronen. Nach WEBER /73/.

Daraus geht hervor, daß man für oxidierte Schichten möglichst hohe Anregungsspannungen zu wählen hat, um den Oxideinfluß auf Elektronenstreuung und -energieverlust gering zu halten. In 3.1.2.4. wird auf den Oxydationseffekt noch ausführlicher eingegangen.

### 3.1.2. Dispersive Messung

Einen Eindruck von der Leistungsfähigkeit dispersiver Röntgenquantenerfassung vermittelt Abb.15, in welcher die Impulsausbeute "unendlich dicker" Proben von Zink, Kupfer und Aluminium aufgetragen und analogen Messungen ohne Wellenlängendispersion gegenübergestellt wurde. Das Spektrometer war hierbei auf die $ZnK_{\alpha 1}$ -Linie eingestellt. Die Impulsausbeute an Cu- und Al-Proben (Trägermaterialien für eine Vielzahl von Elementen) muß, abgesehen von geringen Verunreinigungen, überwiegend dem Bremsspektrum zugeschrieben werden; deshalb steigen beide Kurven mit der Elektronenenergie und liegt $Cu_\infty$ stets über $Al_\infty$ . Vergleicht man die Werte bei z.B. 25 keV, so erkennt man, daß der Beitrag des Al-Trägers bei Übergang auf dispersive Messung um etwa den Faktor 1/400 zurückgeht, während sich die Ausbeute an der Zn-Probe auf 1/30 reduziert; d.h. das Signal/Untergrundverhältnis steigt um mehr als eine Größenordnung.

Weiterhin gestattet eine dispersive Quantenerfassung Untersuchungen an Proben mit einer Ordnungszahldifferenz von $\Delta Z = 1$. Beispiele hierfür sind Mg(Al), Zn(Cu) und die in 3.1.3. erwähnten Tiefenverteilungsmessungen an der Schichtkombination Cu-Zn-Cu. Wie aus Abb.15 hervorgeht, können sogar an der ungünstigeren Kombination Zn(Cu) empfindlichere Messungen durchgeführt werden als an Zn(Al) im nicht-dispersiven Falle.

Schließlich könnte aus Abb.15 noch gefolgert werden, daß für das verbesserte Signal/Untergrund-Verhältnis eine starke Zählrateneinbuße in Kauf genommen werden muß. Dies trifft zwar zu, doch muß berücksichtigt werden, daß bei nicht-dispersiver Messung das Zählrohr durch das gesamte Röntgenspektrum belastet wird und daher schon bei relativ kleinen Probenströmen beträchtliche Totzeiteffekte auftreten. Bei dispersiver Messung hingegen gelangen

überwiegend Quanten der gewünschten Energie in den Detektor, so daß der verminderte Raumwinkel durch Steigerung des Probenstromes wettgemacht werden kann.

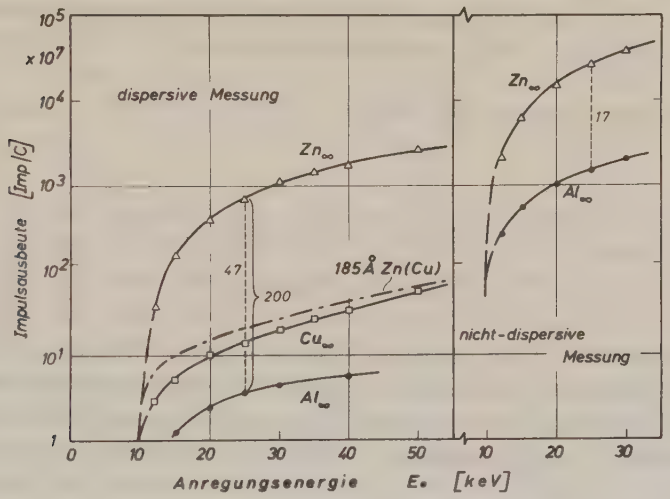



Abb.15: Impulsausbeute massiver Zink-, Kupfer- und Aluminium-Proben in Abhängigkeit von der Anregungsenergie.
Differentialdiskriminator und Spektrometereinstellung auf $ZnK_{\alpha 1}$-Quanten.
Zahlenangaben an 25 keV-Vertikalen: Signal/Untergrund-verhältnis.

Gleichzeitig mit dem Übergang auf dispersive Messung wurde auch die Datenerfassung geändert: statt der Impulsrate N(z) wurde die Impulsausbeute A(z)

$$A(z) = \frac{N(z)}{I_p(z)} \qquad (3.1)$$

gemessen, die Anzahl der registrierten Quanten also nicht auf die Meßzeit, sondern auf die Probenstromladung $I_p \cdot t$ bezogen. Damit wird einerseits die Durchführung der Messung erheblich vereinfacht, weil nun an die Sondenstromkonstanz nicht mehr solch hohe Bedingungen gestellt werden müssen. Andererseits läßt sich

dadurch die Empfindlichkeit des Meßverfahrens in bestimmten Fällen steigern, denn der Probenstrom ist selbst eine Funktion der Schichtdicke: die Abhängigkeit des Elektronenrückstreukoeffizienten von der Ordnungszahl der Probe hat zur Folge, daß der Probenstrom mit steigender Massenbelegung schwerer Elemente sinkt und umgekehrt bei leichten Elementen mit der Schichtdicke anwächst. Die Empfindlichkeit $\varepsilon$ des Meßverfahrens

$$\varepsilon \equiv \frac{\delta A}{\delta z} = \frac{1}{N}\frac{dN}{dz} - \frac{1}{I_P}\frac{dI_P}{dz} \qquad \text{mit} \qquad (3.2)$$

$$\frac{dI_P}{dz} = \begin{cases} <0 & Z_{Träger} < Z_{Meßschicht} \\ >0 & Z_{Träger} > Z_{Meßschicht} \end{cases}$$

hängt demnach von der Kombination:Meßschicht - Träger ab und erhöht sich gegenüber der reinen Impulsratenmessung, wenn die Ordnungszahl des Trägers klein ist im Vergleich zu der der Meßschicht. Diese Empfindlichkeitssteigerung sollte am stärksten ausgeprägt sein

a) bei schweren Elementen auf $Z_{Träger} \ll$

b) bei kleinen Schichtdicken, da

$$\frac{d}{dz}\left|\frac{dI_P}{dz}\right| \leq 0 \quad .$$

"Klein" bedeutet hier: klein im Verhältnis zur maximalen Austrittstiefe der Rückstreuelektronen. Sie ist nach /82/ etwa gleich der halben Elektronenreichweite. Der Bereich für maximales $\frac{dI_P}{dz}$ kann sich jedoch für $E_o \gtrsim 20$ keV weit über 1000 Å erstrekken, wie Messungen der Rückstreurate dünner Schichten unterschiedlichster Ordnungszahl zeigen /83/.

3.1.2.1. Eichung für Kupfer und Zink

Die Impulsausbeute von Kupferschichten auf Aluminiumträgern war Gegenstand ausführlicher Untersuchungen. Es wurde dabei von der Annahme ausgegangen, daß die Eichung für das Nachbarelement Zink nur geringfügig von der Kupfer-Eichung abweichen würde, da sich die Erhöhung der Ordnungszahl von Z = 29 auf 30 nur unwesentlich auf die Elektronenstreuverteilung auswirkt. Lediglich die um 7,6% höhere K-Absorptionskante des Zn könnte eine Abweichung mit sich bringen.

In Abb.16 ist zunächst die Impulsausbeute in Abhängigkeit von der Dicke der Cu-Meßschicht dargestellt. Man erkennt auch hier wieder die Meßbereichserweiterung mit steigender Anregungsspannung. Neu ist, daß die 25 keV-Kurve im gesamten Schichtdickenbereich eine größere Steigung aufweist als der Ausbeuteverlauf bei niedrigeren Anregungsenergien. Steigert man die Elektronenenergie auf 30 keV und darüber, so flacht die Kurve wieder ab*. - In Abb.17 wurden im Schichtdickengebiet $0 \leq z \leq 900$ Å sämtliche Meßpunkte an Cu-Schichten den Werten an Zn-Schichten gegenübergestellt. Die Dicke der Zn-Belegung wurde hierbei durch Vielfachinterferenz auf der Meßschicht bestimmt**. Die Oberflächenrauhigkeit des Trägers erhöht in diesem Falle die Meßunsicherheit auf etwa $\pm$20%.

Schließt man sehr dünne und sehr dicke Schichten aus, so kann aus Abb.17 gefolgert werden, daß die Ausbeutekurven für Zn und Cu weitgehend gleich verlaufen. Im Gebiet $0 < z \lesssim 250$ Å macht sich die etwas größere Bremsstrahlintensität um die $ZnK_\alpha$ - Linie bemerkbar, eine Extrapolation erscheint jedoch problemlos.

Der Unterschied in der K-Absorptionskante sollte erst bei einer Schichtdicke eine Rolle spielen, welche die mittlere Elektronenenergie auf die Größenordnung der Anregungsschwelle $E_K$ reduziert. Diese Dicke kann nach /84/ berechnet werden mittels

$$E_o^2 - E_K^2 = c \cdot \varrho z \qquad (3.3)$$

$\varrho$...Dichte des Elementes
c...Konstante

*vergl. Abb.18 und 20

**selbstverständlich mit einer Deckschicht über der Stufe.

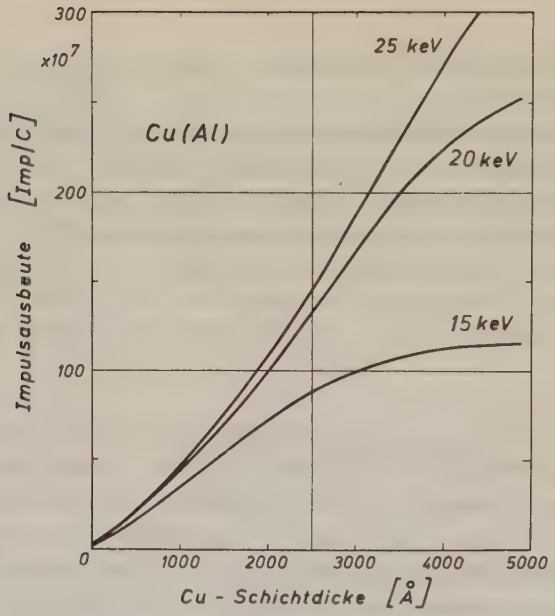



Abb.16: Impulsausbeute dünner Kupferschichten bei Anregungsenergien von 15, 20 und 25 keV.

Spektrometer- und Einkanaldiskriminatoreinstellung auf $CuK_{\alpha 1}$

Träger: Aluminium

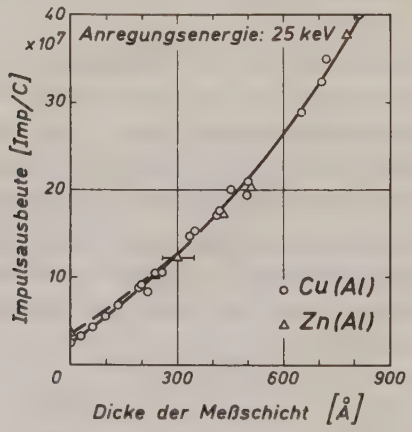



Abb.17: Vergleich der Impulsausbeuten von dünnen Cu- bzw. Zn-Schichten bei einer Elektronenenergie von 25 keV.

Röntgenspektrometer- und Einkanaldiskriminatoreinstellung jeweils auf die $K_{\alpha 1}$-Quantenenergie.

Träger: Aluminium

und beträgt für Cu- und Zn-Schichten bei $E_o$ = 25 keV mehr als $10^4$ Å. Solch hohe Massenbelegungen liegen weit außerhalb des in dieser Arbeit interessierenden Bereiches.

### 3.1.2.2. Eichung für Silber

Die Abhängigkeit der Impulsausbeute von der Dicke dünner Silberschichten zeigt Abb.18. In diese Abbildung wurde auch eine Eichkurve mit aufgenommen, welche einer größeren als der im Bereich $0 < z \lesssim 1000$ Å optimalen Anregungsspannung entspricht. Der starke Anstieg des Untergrundes A(0) mit der Elektronenenergie ist in diesem Falle auf die Fluoreszenzstrahlung des NaCl-Analysatorkristalles zurückzuführen: das den Kristall treffende Röntgen-(brems)spektrum erzeugt durch Fluoreszenzanregung $NaK_\alpha$-Strahlung. Die Energie dieser Quanten liegt mit 3,31 keV um nur 330 eV über der $AgL_\alpha$ - Quantenenergie. Ein Proportionalzählrohr vermag diese beiden Linien nicht mehr zu trennen, so daß ein Teil der $NaK_\alpha$ - Quanten in den auf die $AgL_\alpha$ - Linie eingestellten Kanal fällt und damit mitgemessen wird. Man kann allerdings die störende Fluoreszenzstrahlung durch Einsatz eines Kollimators vor dem Detektor ($K_2$ in Abb.8) beträchtlich reduzieren.

In welch starkem Ausmaß die erhöhte Bremsstrahlung eines Trägers hoher Ordnungszahl die Empfindlichung beeinflußt, wird aus Abb.19 deutlich.

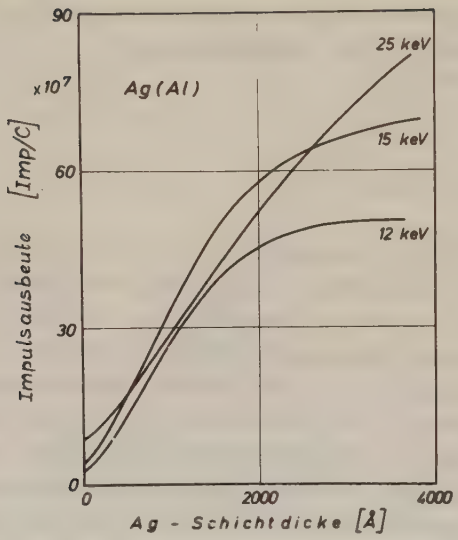



Abb.18: Impulsausbeute dünner Silber-Schichten bei Anregungsenergien von 12, 15 und 25 keV.

Spektrometer- und Einkanaldiskriminatoreinstellung auf $AgL_{\alpha}$ -Quanten.

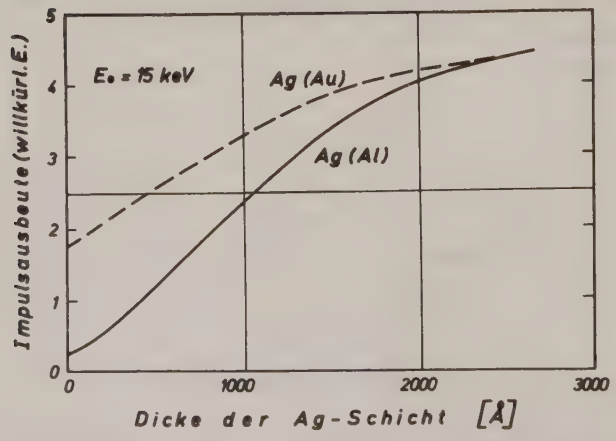



Abb.19: Vergleich der Impulsausbeuten dünner Silber-Schichten auf Aluminium- und Gold-Trägern.

3.1.2.3. Eichung für Aluminium und Magnesium

Obgleich Zerstäubungsmessungen an Aluminium zunächst nicht geplant waren, wurde doch eine Eichung für Al(Cu) durchgeführt, um die Empfindlichkeit an Meßschichten niedriger Ordnungszahl auf einem Träger mit mittlerem Z zu untersuchen, Abb.20. In diesem Falle geht nämlich die Empfindlichkeitssteigerung durch die schichtdickenabhängige Rückstreuung verloren. Hingegen erhöht die Rückstreuung des Trägers die Anregungsdichte in der Meßschicht erheblich:

der Rückstreukoeffizient von massivem Kupfer beträgt bei einer Elektronenenergie von 8 keV 0,35 Elektronen pro Primärelektron, für eine 200 Å dicke Al-Schicht jedoch nur 0,01 /85/. Somit stammen nahezu alle von der Probe rückgestreuten Elektronen vom Träger und durchlaufen die Meßschicht zweimal.
Diese zweite Passage erfolgt zusätzlich mit erhöhter Wahrscheinlichkeit für Röntgenanregung, weil

a) die räumliche Emissionsverteilung rückgestreuter Elektronen etwa ein $\cos\vartheta$ - Gesetz befolgt; d.h. diese Elektronen durchdringen die Meßschicht unter einem mittleren Emissionswinkel von $45^\circ$ zur -z-Richtung; m.a.W.: die Meßschicht erscheint für 35% aller auf die Probe treffenden Elektronen in einer mittleren Dicke von $z + z\cdot(\frac{1}{\cos\vartheta}) = 3z$;

b) die verminderte Energie der Rückstreuelektronen /86/ näher am Maximum des Ionisierungswirkungsquerschnittes liegt als die Anregungsenergie $E_0$.

Durch diesen Effekt erhöht sich die Empfindlichkeit stark: im Schichtdickengebiet $z < 1000$ Å kann an Al(Cu) und Cu(Al) mit durchaus vergleichbarer Genauigkeit gemessen werden*.

Abb.21 zeigt die Mg(Cu)-Eichkurve, nach der der überwiegende Teil der Mg-Zerstäubungsmuster ausgewertet wurde. Vereinfachend für die weitere Handhabung der Meßdaten erwies sich eine allgemeine Eigenschaft der Mg(Cu)- und Al(Cu)-Kurven: in dem untersuchten Spannungs- und Schichtdickenbereich steigen die Ausbeutekurven zunächst linear an; die Maximalempfindlichkeit wird bei gegebener Anregungsenergie schon für kleine Schichtdicken erreicht**.

*vgl. Abb.24 und 25
**vgl. Abb.25

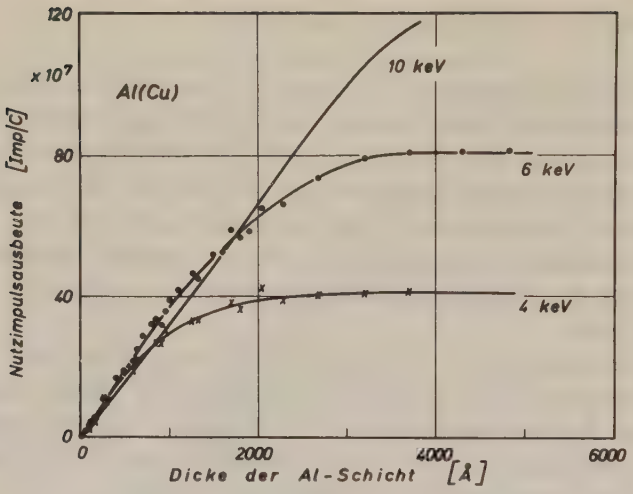



Abb.20: $AlK_\alpha$ -Impulsausbeute dünner Aluminium-Schichten für Anregungsenergien von 4, 6 und 10 keV.

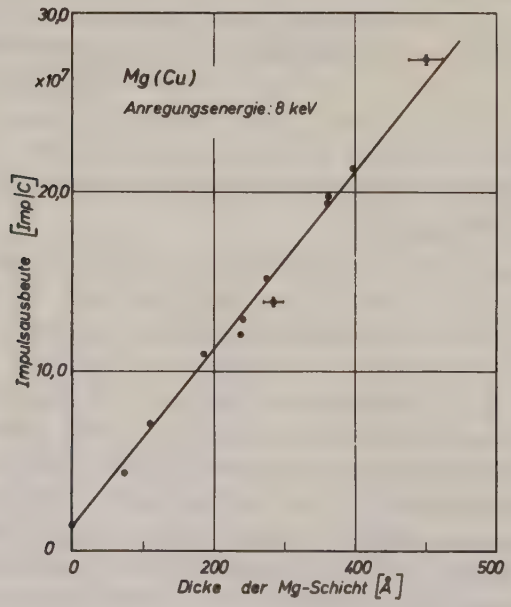



Abb.21: Impulsausbeute dünner Magnesium-Schichten.

Differentialdiskriminator und Spektrometer (mit Vorkollimator!) eingestellt auf $MgK_\alpha$ .

Um vom Sauerstoffeinfluß in oxydierten Schichten weitgehend unabhängig zu werden, sollte mit möglichst hoher Anregungsspannung gearbeitet werden (Abb.14). Steigert man jedoch die Elektronenenergie auf 10 keV und mehr, so fällt das Signal/Untergrundverhältnis stark ab. Dies ist - ähnlich den Messungen an Ag - auf die Fluoreszenzstrahlung des Analysators zurückzuführen. Die in Abb.22 wiedergegebenen Impulshöhenspektren zeigen den störenden Einfluß der $PK_\alpha$ - Linie deutlich.

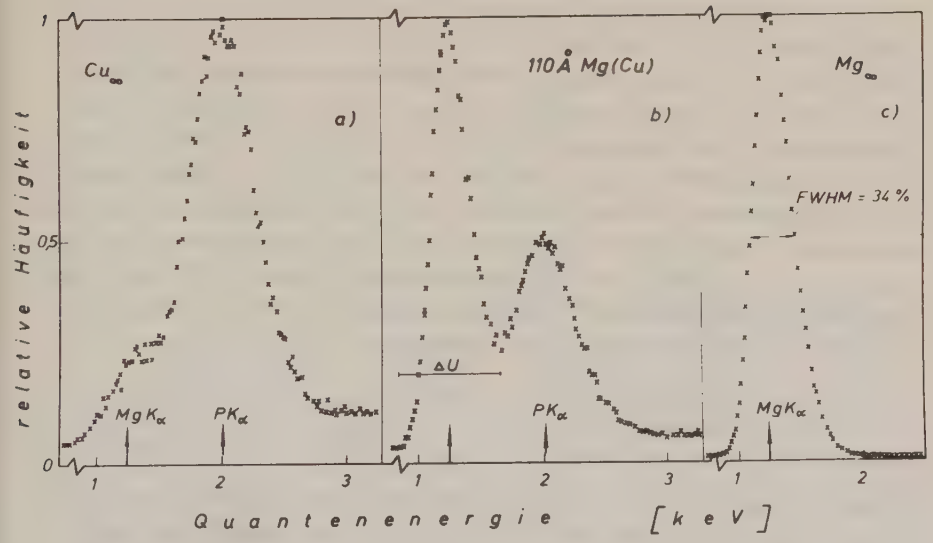



Abb.22: Zum Einfluß der $PK_\alpha$ - Fluoreszenzstrahlung des AdP - Analysatorkristalles: Ausschnitte aus Impulshöhenspektren von

a) massivem Kupfer
b) 110 Å Mg auf Cu-Träger
c) massivem Magnesium

bei Beschuß mit 8 keV-Elektronen

Spektrometereinstellung auf $MgK_\alpha$ ,
$\Delta U$...Kanalbreite des Differentialdiskriminators

Der Einsatz eines Differentialdiskriminators scheint demnach unerläßlich für eine optimale Nutzimpulsselektion. - Ab etwa 9 keV kommt zu dem Röntgenspektrum noch die $CuK_\alpha$ - Strahlung des Trägers hinzu, welche ebenfalls die $PK_\alpha$ - Linie anregt. Der Energiebereich $>10$ keV wird somit für Mg- und Al-Schichten im Dickengebiet $0 < z \lesssim 1000$ Å zunehmend ungünstiger; für die Wahl solch hoher Anregungsenergien besteht hier jedoch keine Notwendigkeit.

Oxydation verändert nicht nur die Ausbeute an charakteristischen Quanten, sondern auch die Energie der Quanten. An K-Linien ist dieser Effekt mit hochauflösenden Röntgenspektrometern bis zur Ordnungszahl Z = 25 beobachtet worden /87/. Die Wellenlängenverschiebung der Aluminium-$K_\beta$ - Linie infolge Oxydation beträgt $\Delta\lambda = 3\cdot10^{-2}$ Å /88/. Bei allen in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Elektronensondenmessungen an Al und Mg wurde jedoch stets die Ausbeute an $K_\alpha$ - Quanten als Maß für die Massenbelegung herangezogen. Diese Linie ist bei den erwähnten Anregungsspannungen nicht nur die intensivste im Röntgenspektrum, sondern sie zeigt sich auch gegenüber chemischen Bindungseinflüssen wesentlich unempfindlicher*; ihre Verschiebung beträgt bei Al nur $1{,}5\cdot10^{-3}$ Å, entsprechend einer Glanzwinkeldifferenz

$$\Delta\vartheta = \frac{\Delta\lambda}{2d\cdot\cos\vartheta} \triangleq 1{,}4\cdot10^{-2}\ ^\circ \quad .$$

Entsprechende Werte an Mg sind nicht bekannt. Es wurde versucht, durch wechselweisen Beschuß von MgO und metallischem Mg einen Unterschied in der Spektrometereinstellung für maximale Impulsausbeute zu finden - stets mit negativem Resultat; mit dem Spektrometerkanal zu MRS 1T war eine $K_\alpha$-Linienverschiebung durch Oxydation oder andere chemische Bindungen an Mg nicht festzustellen. Für die Durchführung der Schichtdickenmessung bedeutete dies eine Vereinfachung.

Eine Verfälschung der Impulsausbeute durch Ausbildung einer Oxidschicht ist schließlich noch möglich durch die Sekundärelektronenemission. Zwar ist für Anregungsspannungen über 5 keV die

---

*$K_\beta$ : $M_{II,III} \longrightarrow K$; $K_\alpha$ : $L_{II,III} \longrightarrow K$;

SE-Komponente in (2.3) klein im Vergleich zu $I_{RE}$, sie hängt jedoch stark von der Oberflächenschicht ab /89/. Da zur SE-Emission nicht mehr als etwa 10 Atomlagen beitragen /89/,/90/, ist eine Schichtdickenabhängigkeit in dem hier interessierenden Bereich nicht zu befürchten, wohl aber ein Einfluß der Bedingungen beim Schichtaufbau (Bestäubungs- bzw. Bedampfungsrate). Es empfielt sich daher vor allem bei Mg-Schichten*, die Sekundärelektronen am Verlassen der Probe zu hindern. Sämtliche Messungen an Mg wurden daher mit einer Sekundärelektronen-Zugspannung von +32 V gegen Erde durchgeführt. Dadurch vermindert sich die Impulsausbeute bei 8 keV Anregungsenergie um 14%; bei $E_o$ = 6 keV ist die Reduktion doppelt so groß.

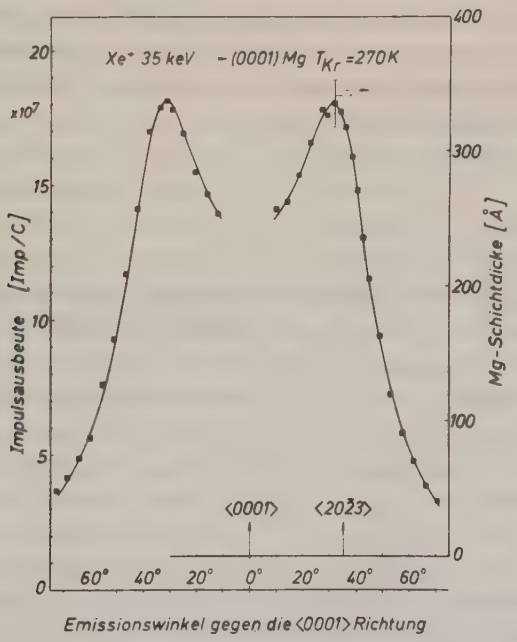



Abb.23: Schichtdickenprofil nach Zerstäubung einer (0001)-Magnesiumkristalloberfläche mit 35 keV $Xe^+$-Ionen. Die Vermessung erfolgte im (11$\bar{2}$0)-Azimut.

*MgO besitzt eine der höchsten bekannten SE-Ausbeuten

Ein Beispiel für ein Zerstäubungs-Schichtdickenprofil gibt Abb.23. Es wurde gewonnen durch Beschuß der (0001)-Ebene eines Mg-Kristalles mit 35 keV-Xenon-Ionen. Die eingezeichneten Meßpunkte entsprechen Mittelwerten aus 3 bis 6 Einzelmessungen. Der statistische Fehler dieser Mittelwerte liegt i.a. bei 1% und ist damit kleiner als die Abmessung der Symbole. Die eingezeichneten Fehlergrenzen beziehen sich auf die Absolutbestimmung der Schichtdicke.

Eine Auswirkung einer Oxydation des Niederschlages nach dessen Entstehung konnte nicht festgestellt werden: Niederschlagsmuster, welche nach 6-wöchiger Lagerung an Luft in der Elektronensonde vermessen wurden, ergaben dasselbe Schichtdickenprofil wie unmittelbar nach der Zerstäubung. In dieser Zeit verliert das Niederschlagsmuster seinen metallischen Glanz vollkommen. Ganz allgemein ist festzustellen, daß der optischen Eindruck von Mg- und Al-Niederschlagsverteilungen von dem in der ES ermittelten Profilverlauf völlig abweichen kann.

### 3.1.3. Allgemeines zur Methodik

Auf die Möglichkeit der Schichtdickenmessung mit Hilfe von Elektronenmikrosonden haben zuerst SWEENEY et al./91/ und später CHOPRA et al./92/ hingewiesen. In beiden Arbeiten wurde eine über weite Schichtdickenbereiche lineare Abhängigkeit der normierten Impulsraten gefunden, auf die Rolle der Anregungsenergie jedoch nicht eingegangen. Die Tatsache, daß diese in /91/ gar nicht angegeben wurde und in /92/ eine Energie von 25 keV zur Vermessung von Al-Schichten (!) verwandt wurde, deutet wohl darauf hin, daß die empfindlichkeitsbestimmende Funktion von $E_o$ nicht erkannt wurde. WIECH et al./93/,/94/ fanden bei Untersuchungen zur Entstehungstiefe charakteristischer Röntgenstrahlung im Energiegebiet von 1 - 25 keV normierte Kurvenscharen, welche den in Abb.13 wiedergegebenen weitgehend ähnlich sind*.

---

* Eine Normierung auf die Impulsrate der "unendlich dicken Schicht" liefert wegen der Energieabhängigkeit des Normierungsfaktors (Abb.15) nur eine scheinbare Übersichtlichkeit der Darstellung. Vor allem hinsichtlich der Empfindlichkeit verleitet sie zu Fehlschlüssen!

BUTZ & WAGNER /95/ gelang es durch geeignete Wahl der Elektronenenergie Molybdän-Schichten auf Wolfram-Trägern bis in den Bereich atomarer Bedeckungen zu messen*.

Um die entscheidende Rolle der Anregungsenergie hervorzuheben, wurden in Abb.24b und Abb25 die differenzierten Impulsausbeuten an den Systemen Cu(Al) und (Al)Cu zusammengestellt. Gerade der durch Variation der Elektronenenergie gegebene weite Spielraum an Empfindlichkeit und erfaßbarem Schichtdickenbereich ist eines der charakteristischen Merkmale dieser Meßmethode. Gemeinsam mit der elementspezifischen Erfassung ergibt sich daraus der typische Anwendungsbereich des Verfahrens.

Es erhebt sich die Frage, ob eine Eichung nicht auf theoretischem Wege gewonnen werden könnte, da doch Ionisierungswirkungsquerschnitte Q(E) für eine Reihe von Elementen mit ausreichender Genauigkeit bekannt sind /96/. Die eigentliche Schwierigkeit des Problems liegt jedoch nicht in der mehr oder weniger zutreffenden Beschreibung der Ionisierungs- sowie der K-Quantenemissionswahrscheinlichkeit $\omega_K$, sondern in der Erfassung der Elektronenstreuverteilung:

ein Elektron der Energie E erzeugt entlang des Bahnelementes ds im Mittel $dn_K$ charakteristische K-Quanten des betreffenden Elementes,

$$dn_K = N \cdot \omega_K \cdot Q_K(E) \cdot ds \quad , \qquad (3.4)$$

N = Anzahl der Atome/cm$^3$

---

* Zu erwähnen sind in diesem Zusammenhang auch die Arbeiten von HASSELTINE et al./117/ und ROBINSON et al./34/, in welchen die Niederschlagsverteilungen von Al- bzw. Zr-Einkristallen untersucht wurden. In /34/ wurde kein Ergebnis mitgeteilt; die starke Streuung der Meßpunkte in /117/ erinnert sehr an die ersten Zn-Auswertungsversuche der vorliegenden Arbeit.

im Vollmaterial ("$\infty$ dicke Schicht") daher

$$n_K(\infty) = N \cdot \omega_K \cdot \int_0^{s_K} Q_K \cdot ds = N \cdot \omega_K \cdot \int_{E_o}^{E_K} \frac{Q_K(E)}{\frac{dE}{ds}} \, dE \quad ; \qquad (3.5)$$

$s_K$...Wegstrecke, nach welcher $E \leq E_K$

mit den BETHEschen Beziehungen

$$Q_K(E) \sim \frac{1}{E \cdot E_K} \cdot \ln\left(\frac{E}{E_K}\right) \qquad (3.6)$$

$$-\frac{dE}{ds} \sim \frac{1}{E} \cdot \ln(\text{const} \cdot E) \qquad (3.7)$$

ergibt (3.5) einen Ausdruck mit integrallogarithmischen Gliedern /97/, so daß man auf Tabellen angewiesen ist. Da keineswegs alle Elektronen bis $E = E_K$ abgebremst werden, sondern durch Rückstreuprozesse einen u.U. viel kürzeren Weg als $s_K$ in der Probe zurücklegen, müssen diese Ionisationsverluste durch zusätzliche Korrekturen berücksichtigt werden (Einführung von sog. "useful trajectories").
Für dünne Schichten ($z < s_K$) wird eine Berechnung weiter erschwert, da

$$n_K(z) = N \cdot \omega_K \cdot \int_0^{s(z)} Q_K \cdot ds \qquad (3.8)$$

eine Zuordnung der Bahnlänge s des Elektrons in der Schicht der Dicke z erfordert.

In der Praxis wird daher anders vorgegangen: die Anzahl der pro Raumwinkeleinheit unter dem Winkel $\chi$ zur Probennormalen emittierten K-Quanten beträgt

$$n_K(z) = \int_0^z \frac{dn_K}{dz'} \cdot e^{-\mu \frac{z'}{\cos\chi}} dz' \qquad (3.9)$$

$\mu$...Absorptionskoeffizient

wobei die Funktion

$$\frac{dn_K}{dz} \equiv \Phi(z)$$

die Quellverteilung der charakteristischen Röntgenstrahlung und der Exponentialfaktor die Selbstabsorption beschreibt.
Berechnungen von $\Phi(z)$ wurden durchgeführt entweder durch numerische Lösung der Transportgleichung /98/ oder mit Hilfe eines Monte-Carlo-Verfahrens /99/.
Experimentell läßt sich die Tiefenverteilungsfunktion durch Differentiation von Ausbeutekurven gewinnen /100/, oder nach einer von CASTAING et al./101/ entwickelten Sandwich-Methode direkt messen. In letzterem Falle wird auf dem Träger (Element A) eine dünne Schicht des Elementes B aufgedampft ($Z_B = Z_A+1$), und darauf wieder eine Schicht des Elementes A. Gemessen wird die Ausbeute an charakteristischer Röntgenstrahlung des Tracers B in Abhängigkeit von der Dicke der Deckschicht. Ohne auf dieses Verfahren weiter einzugehen, soll an Hand einiger am System Cu-Zn-Cu gewonnener Meßergebnisse /102/ ein Vergleich mit den differenzierten Ausbeutekurven durchgeführt werden, Abb.24 a,b. Beide Kurvenscharen weisen ein ausgeprägtes Maximum auf, dessen Lage sich mit steigender Energie zu größeren Schichtdicken hin verschiebt. Die Erklärung dafür ist bei Abb.24a vergleichsweise einfach: durch die Cu-Deckschicht erfährt der Elektronenstrahl eine Aufweitung, so daß die Elektronenbahnen die Tracer-Schicht schräg durchsetzen. Dadurch erhöht sich die Wahrscheinlichkeit für K-Ionisation eines der Zn-Atome. Gleichzeitig mit der Strahlaufweitung steigt jedoch auch der Energieverlust mit zunehmender Deckschicht-Dicke, so daß schließlich die Zn-K-Quantenausbeute wieder abfällt. Die erwähnte Beziehung $Z_B = Z_A+1$ sorgt hierbei u.a. für eine weitgehende Gleichheit zwischen Element A und Tracer B hinsichtlich der Elektronenstreuverhältnisse und Anregungsbedingungen. Die gewonnenen Meßkurven können somit als typisch für das Element A, hier also Kupfer, angesehen werden.

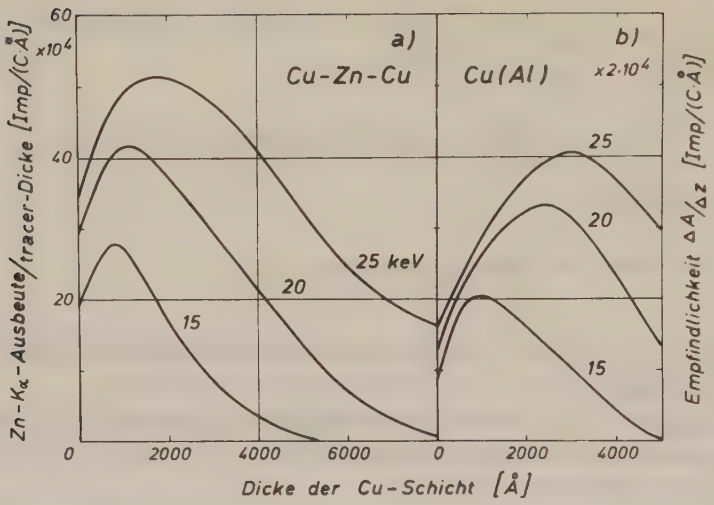



Abb.24: a) Ausbeute an $ZnK_\alpha$ - Impulsen an einem Cu-Zn-Cu-Sandwich in Abhängigkeit von der Dicke der Cu-Deckschicht, bezogen auf die Dicke der Zn-Tracerschicht.

b) Differenzierte Impulsausbeute von Cu-Schichten auf Al-Trägern (vgl. Abb.16).

Kurvenparameter: Anregungsenergie $E_o$

Die differenzierten Cu(Al)-Ausbeutekurven geben hingegen keineswegs die Verteilung der Anregungsdichte in einer Kupferprobe wieder, da der Al-Träger die Elektronenflußdichteverteilung in der darüberliegenden Cu-Schicht zu sehr beeinflußt: es sinkt sowohl der Rückstreukoeffizient als auch die mittlere Energie rückgestreuter Elektronen - und damit die gesamte Anregungsdichte in der Oberflächenschicht. Der anfängliche Anstieg der differentiellen Impulsausbeute mit der Schichtdicke infolge der elastischen Aufstreuung des Elektronenstrahles ist hier wegen der verminderten Rückstreuung stärker ausgeprägt.

Der umgekehrte Fall liegt vor am System Al(Cu): hier erhöht der Träger die Elektronendichte im Vergleich zum reinen Aluminium. Von dem deutlich ausgeprägten Maximum der Tiefenverteilungsfunktion, welches CASTAING & HENOC /101/ an einem Al-Mg-Al-Sandwich beobachteten $\left(\Phi_{max} \approx 1{,}5 \cdot \Phi(0)\right)$, verbleibt hier nur noch eine schwache Andeutung bei $E_o$ = 10 keV. Unterhalb dieser Energie

konnte ein Empfindlichkeitsmaximum nicht festgestellt werden, Abb.25. Offenbar überdeckt die Trägerrückstreuung* die Aufweitung des Elektronenstrahles in der Meßschicht - ein Effekt, der vor allem bei leichten Elementen wegen ihres schwachen Streuvermögens stark ausgeprägt zu erwarten ist.

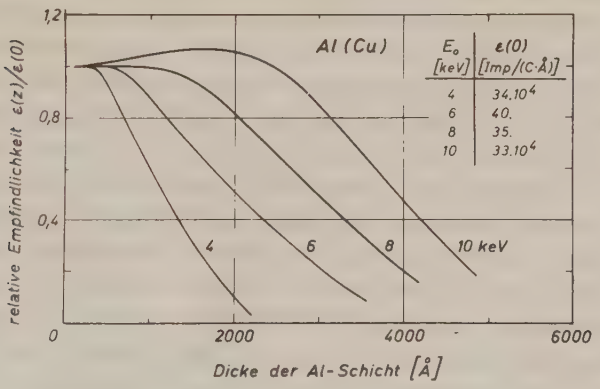



Abb.25: Differenzierte Impulsausbeute von Al-Schichten auf Cu-Trägern (vgl.Abb.21).
Normierung auf die Anfangsempfindlichkeit $\varepsilon(0)$
Kurvenparameter: Anregungsenergie $E_0$

Der Einfluß des Trägers auf die Streuverteilung ist jedoch nur eine Ursache für die Abweichung der Tiefenverteilungsfunktion $\Phi(z)$ von der Empfindlichkeitsfunktion $\varepsilon(z)$. Der zweite Hauptgrund liegt in dem mit der Meßschicht variierenden Beitrag des Bremskontinuums. Während an Cu-Zn-Cu der Bremsstrahlenanteil praktisch konstant bleibt, und daher aus der Gesamtimpulsausbeute der K-Quantenanteil durch einfache Substraktion zu gewinnen ist, steigt an Cu(Al) dieser "Untergrund" mit wachsender Cu-Bedekkung**. Es ist daher nicht möglich, eine reine Cu-Impulsaus-

*Auf die besondere Effizienz dieser isotrop strahlenden Elektronenquelle wurde bereits in 3.1.2.3. hingewiesen.

**In guter Näherung entspricht dies in Abb.15 dem Übergang von $Al_\infty$ auf $Cu_\infty$ .

beute an Cu(Al) anzugeben*. Aus diesem Grunde kann auch ein Vergleich der Ordinatenwerte in Abb.24a und b nur unter Berücksichtigung der in Abb. 15 angegebenen $Cu_\infty$-Werte durchgeführt werden. In jedem Falle liegt dann die differentielle Impulsausbeute an Cu-Zn-Cu höher als an Cu(Al).

Eine geschlossene mathematische Form, welche die Tiefenverteilungsfunktion in Abhängigkeit von Anregungsenergie und Schichttiefe wiederzugeben vermag, ist nicht bekannt. Auch kennt man den Verlauf von $\phi(z)$ nur für einige wenige Elemente. Wegen der großen Bedeutung dieser Funktion in der quantitativen Elektronenstrahlanalyse ist jedoch in Zukunft eine Erweiterung des experimentellen und theoretischen Materials zu erwarten. Bei bekanntem $\phi(z)$ ist es dann möglich, die Quantenausbeute in Abhängigkeit von der Schichtdicke durch (numerische) Integration von (3.9) zu berechnen. Um schließlich die Impulsausbeute zu erhalten, muß durch Messung eine Apparatekonstante ermittelt werden, welche u.a. den erfaßten Raumwinkel, die Transmission des Spektrometers sowie den Wirkungsgrad des Zählrohres enthält. Dieses semiempirische Eichverfahren kann auf Schichtkombinationen angewandt werden, deren Ordnungszahldifferenzen nicht zu groß sind.

Abgesehen von der Bedeutung, die den Tiefenverteilungskurven für eine theoretische Erfassung von Elektronensondenmessungen zukommt, lassen sich auch einige praktische Konsequenzen daraus ableiten. Dies sei an Hand von Abb.26 beschrieben: Ähnlich den Tiefenverteilungsmessungen wurde auf eine 110 Å dicke Mg-Schicht eine treppenförmig anwachsende Gold-Deckschicht aufgedampft. Als Träger diente, wie bei allen Mg-Messungen, eine 50 µm dicke Cu-Folie. Ziel dieser Messungen war es, die Mg-Impulsausbeute durch Aufstreuung des Elektronenstrahles in der Au-Schicht zu erhöhen. Im vorliegenden Falle wird bei einer Deckschichtdicke von 200 Å ein Maximum erreicht, welches etwa 40% über der Impulsausbeute der unüberdampften Mg-Schicht liegt. Aus den Untersuchungen von COSSLETT & THOMAS /84/ zur Energie- und Winkelverteilung von an freitragenden Schichten gestreuten Elektronen läßt sich entnehmen, daß eine Au-Belegung von 200 Å die mittlere Elektronenenergie nur um etwa 15% reduziert, gleichzeitig den

*Dies gilt nur für das hier verwendete Spektrometer, welches eine BRAGG-Winkelverstellung während der Messung nicht gestattet.

Strahl jedoch so stark aufweitet, daß die wahrscheinlichste Elektronenbahn unter einem Winkel von 30° zur Einfallsrichtung des Primärstrahles (= z-Achse in Abb.8) durch die Mg-Meßschicht verläuft. Trotz dieser hohen Aufstreuung (vollständige Diffusion wird nach einer Dicke von $z_{Au}$ = 400 Å erreicht) ist demnach der Energieverlust so gering, daß man sich noch auf dem hochenergetischen Ast des Mg-K-Ionisierungsquerschnittes (3.6) befindet.

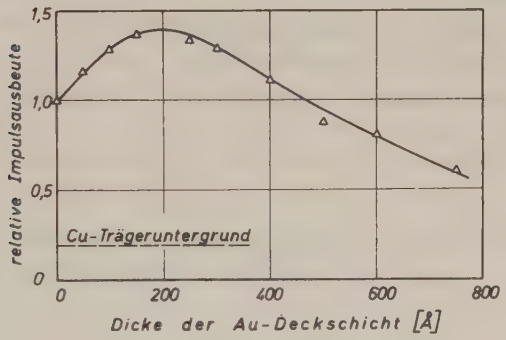



Abb.26: Impulsausbeute einer 110 Å dicken Mg-Schicht, welche mit einer stufenförmig anwachsenden Au-Deckschicht überdampft wurde.

Normierung auf die Zählausbeute der unüberdampften Mg-Schicht.

Anregungsenergie: 8 keV Träger: Cu

Der mit der erhöhten Impulsausbeute verbundene geringere statistische Fehler ist keineswegs der einzige Vorteil, den die Überdampfung der Meßschicht mit einer dünnen Deckschicht eines Elementes hoher Ordnungszahl mit sich bringt: da diese Schicht die Ladungsträgerabfuhr übernehmen kann, eröffnet sich die Möglichkeit, auch isolierende Schichten oder Schichten auf isolierenden Trägern in der Elektronensonde zu vermessen; die Anwendbarkeit von z.B. Kunststoffträgern gestattet wiederum eine nicht-dispersive Quantenzählung bis zu Schichtdicken unter 100 Å, da hier

der störende Einfluß des Trägerbremskontinuums weitgehend fehlt. Schließlich gewährleistet die Deckschicht konstante Rückstreu- und Sekundärelektronenausbeuten. Damit sollte auch eine kontinuierliche Impulsregistrierung bei der Vermessung von Zerstäubungsmustern einfacher sein.

Zusammenfassend können daher dem Verfahren, die Dicke dünner Schichten durch Messung der Intensität charakteristischer Röntgenstrahlung zu bestimmen, folgende Merkmale zugesprochen werden:

universell im Elementbereich $Z \geq 9$
elementspezifisch
Nachweisgrenze im Gebiet monoatomarer Bedeckung
variabler Meßbereich bis über $10^4$ Å
variable Empfindlichkeit
zerstörungsfrei.

## 3.2. Niederschlags- und Emissionsverteilungen

### 3.2.1. Zink

Fast alle bisher veröffentlichten Untersuchungen zur anisotropen Emission hexagonaler Einkristalle wurden an Zink durchgeführt, und hier beinahe ausschließlich an der (0001)-Ebene.Dies liegt wohl daran, daß sich Zink(0001)-Oberflächen durch Spaltung sehr einfach gewinnen lassen. PEROVIČ /18/ fand nach Beschuß mit senkrecht auf diese Ebene auftreffenden $Ar^+$-Ionen ($E_o$ = 10 keV) 6 Niederschlagsmaxima unter einem Emissionswinkel von $\vartheta \doteq 33^o$. Verwendet man zur Sammlung des zerstäubten Materials nicht kugelförmige, sondern ebene Auffänger /59/,/103/, so erscheint auf diesen ein sechseckiger Niederschlag. Auf diese Weise läßt sich zwar bequem eine Orientierung des Kristallplättchens im Beschleuniger vornehmen, doch eine Bestimmung der Emissionscharakteristik ist nicht möglich.

Im Abb.27a sind nochmals die für die Zerstäubung der (0001)-Ebene wichtigsten Stoßrichtungen dargestellt.

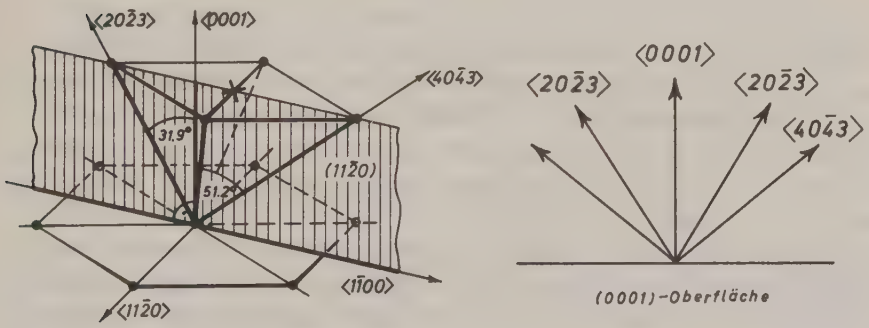



Abb.27: Relevante Stoßrichtungen für die anisotrope Zerstäubung der (0001)-Oberfläche von Zink:

a) für ein herausgegriffenes Ebenenpaar;

b) nach Mittelung über eine größere Anzahl von Atomlagen (Zerstäubungsverhältnisse).

Danach würde ein Zerstäubungsmuster, bei dem nur eine einzige Atomlage von der Oberfläche abgetragen worden war, eine dreizählige Symmetrie aufweisen. Erst unter Hinzunahme der nächstfolgenden Schicht, welche $30^{\circ}$ gegen die erste verdreht ist, ergibt sich die beobachtete 6-zählige Struktur des Niederschlages. Gemittelt über die große Zahl der bei Zerstäubungsexperimenten zur Emission gelangenden Atomlagen stellen sich die Stoßrichtungen in der $(11\bar{2}0)$-Azimutalebene gemäß Abb,27b dar. Nicht berücksichtigt wurde die $\langle 11\bar{2}3\rangle$-Richtung, deren Emissionsmaximum in der $(10\bar{1}0)$-Azimutalebene liegen würde. Die Spitzen der 6-eckigen Niederschläge auf ebenen Auffängern sowie die Maxima der Schichtdickenprofile in verzerrungsfreier Auffängergeometrie liegen jedoch stets in $(11\bar{2}0)$. Der experimentelle Befund spricht demnach gegen einen Beitrag der zick-zack-Fokussierung entlang $\langle 11\bar{2}3\rangle$.

Der überwiegende Teil der Zn-Zerstäubungsmuster wurde auf ungenügend gekühlten Kunststoffolien aufgenommen und deren Niederschlagsverteilung durch Messung der optischen Absorption ermittelt (Kap.2.2.). Die beiden erwähnten Störeffekte -

a) unvollständige Kondensation verzerrt die NV,

b) Oxydation verfälscht die optische Schichtdickenmessung -

lassen aus diesem Grunde Rückschlüsse auf die Emissionsverteilung nur unter Einschränkungen zu. Insbesondere können Halbwertsbreitenbestimmungen auf diese Weise nicht durchgeführt werden, da beide Effekte eine scheinbare Erhöhung der Anisotropie bewirken. Die Lage der Emissionsmaxima hingegen bleibt von diesen Einflüssen weitgehend unberührt.

Es zeigte sich, daß die Reproduzierbarkeit der Niederschlagsverteilungen i.a. umso besser ist, je größer die Auffängerbestäubungsrate und je niedriger die Kristalltemperatur, d.h.je größer das Übersättigungsverhältnis*. Als weiteres Zuverlässigkeitskriterium für eine Serie von Niederschlagsverteilungen kann die Proportionalität zwischen Ionendosis und Niederschlagsdichte herangezogen werden. ROBINSON & SOUTHERN stellten an Mg, Zn und Cd fest, daß solch eine Abhängigkeit nicht besteht /34/. Auch in der vorliegenden Arbeit, in der die Kunststoffauffänger auf etwa $-70^{\circ}$ gekühlt waren, konnte eine Ladungsproportionalität nur bei großen Übersättigungen angenähert erreicht werden. In diesen

* vgl. A.II., S.109

Fällen tritt auch eine geringere Abweichung der Niederschlagsverteilungen zwischen Kunststoff- und den kondensationsfreundlicheren Glimmerfolien auf. Experimenten mit $Xe^+$-Ionen bei einer Kristalltemperatur von 100 K kommt demnach eine größere Aussagekraft zu als solchen mit $Ne^+$-Ionen bei 370 K. Eine weitere Steigerung der Kristalltemperatur erhöht die Kondensationshemmung so stark, daß manche Auffänger gänzlich ohne Niederschlag verblieben, während andere abnormal scharfe Niederschlagsmaxima zeigten.

Die Zerstäubungsexperimente an Zink ergaben eine Reihe neuer Erscheinungen, von denen die beiden folgenden die überraschendsten sind, da sie auf den ersten Blick in direktem Gegensatz zu dem Zerstäubungsverhalten von fcc-Metallen zu stehen scheinen:

1) der Winkel maximaler Emission bleibt nicht konstant, sondern hängt von Energie und Masse der Projektilionen ab. Für leichte Ionen liegt das Niederschlagsmaximum unter dem Polarwinkel der $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Stoßrichtung, bei schweren Ionen liegt es über $\vartheta_{\langle 20\bar{2}3\rangle} = 31{,}9^\circ$. Eine Energieerhöhung ist i.a. mit einer Verminderung des Winkels maximaler Emission verbunden, Tabelle V, Abb.28;
2) eine Abkühlung des Kristalles auf 100 K verbreitert die Niederschlagsverteilung. Im speziellen Falle des Beschusses mit 23 keV $Ne^+$- und $Ar^+$-Ionen kann ein Emissionsmaximum nicht mehr festgestellt werden. Das Schichtdickenprofil weist gemäß Abb.28 a,b mit steigendem Polarwinkel einen monotonen Abfall auf. Hingegen besitzt der Niederschlag auf ebenen Auffängern eine unvermindert ausgeprägte 6-eckige Struktur, so daß die naheliegende Erklärung dieses Effektes durch eine Gitterschädigung nicht zutrifft; dagegen spricht auch, daß diese Schädigung ebenfalls bei $Kr^+$- und $Xe^+$-Ionen zu erwarten wäre, sowie daß die Niederschlagsverteilung etwa kosinusförmig verlaufen müßte.

| Projektil-ion | Kristalltemperatur [K] | Polarwinkel der Niederschlagsmaxima bei einer Ionenenergie von 10 keV | 23 keV |
|---|---|---|---|
| $Ne^+$ | 100 | - | keine Maxima in ⟨20$\bar{2}$3⟩ |
| | 270 | 31,5° | 27,5° |
| | 370 | - | 29° |
| $Ar^+$ | 100 | - | keine Maxima in ⟨20$\bar{2}$3⟩ |
| | 270 | 31,3° | 29° |
| | 370 | 32,4° | 28,5° |
| $Kr^+$ | 100 | 37,5° | 27,5° |
| | 270 | 31,7° | 32° |
| | 370 | - | 32° |
| $Xe^+$ | 100 | 35° | 35° |
| | 270 | 33,5° | 34° |
| | 370 | - | 32° |

Tabelle V: Lage der Niederschlagsmaxima bei Zerstäubung der (0001)-Ebene von Zink in Abhängigkeit von der Ionenmasse. Der mittlere Fehler der Einzelmessung beträgt ±1,2°

Die wenigen Zn(0001)-Zerstäubungsmuster, welche auf tiefgekühlten Aluminium-Auffängern aufgenommen und in der Elektronensonde vermessen wurden, bestätigten die Maximumsverschiebung durchwegs. Für 30 keV $Ar^+$-Ionen z.B. reduzierten sich die Emissionsmaxima weiter bis auf 26 - 27°. Entsprechende Experimente zu dem "anomalen" Temperatureffekt wurden nicht mehr vorgenommen. Obgleich man aus den Versuchsserien mit Kunststoffauffängern den Schluß ziehen könnte, daß mit steigender Kristalltemperatur die Niederschlagsverteilung an Schärfe zunimmt, (Abb.28 b-e), soll diese Aussage wegen der Kondensationshemmung hier auf den Tieftemperaturbereich beschränkt bleiben. An dem qualitativen Verlauf der Kurve in Abb.28a vermag jedoch weder Oxydation noch verminderte Kondensation etwas zu ändern (etwa durch Unterdrückung eines relativen Minimums zwischen ⟨0001⟩ und ⟨20$\bar{2}$3⟩)!

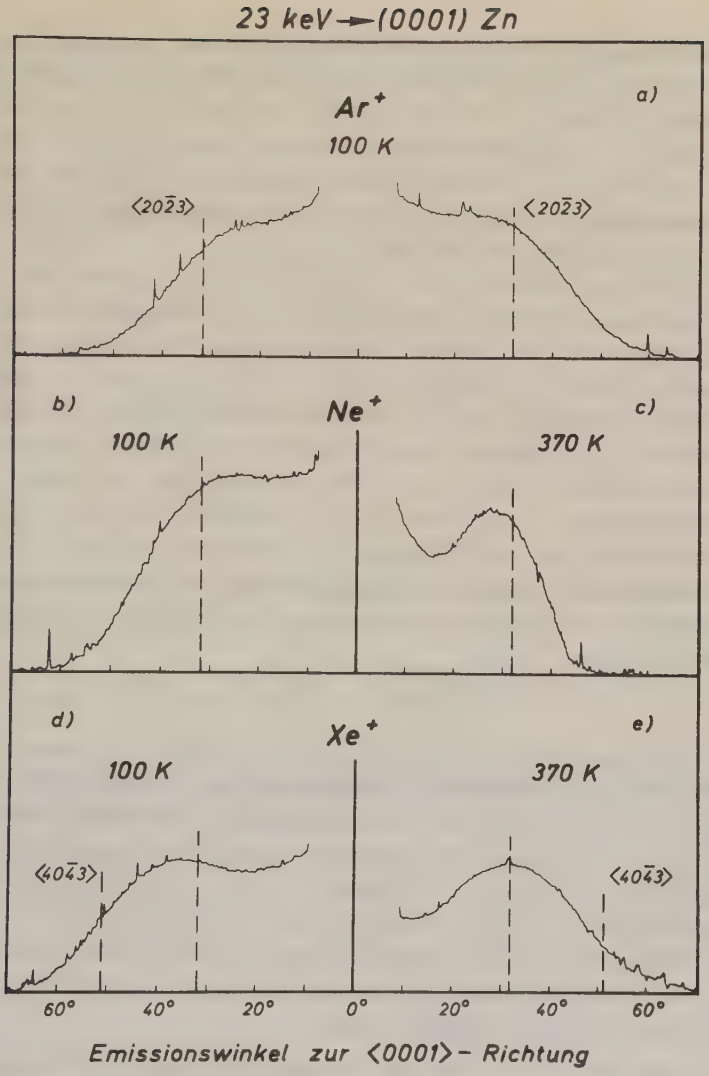



Abb.28: Photometer-Registrierkurven verschiedener Zink(0001) - Niederschlagsverteilungen auf Agfafol-Auffängern

Kristalltemperatur: a),b) und d) 100K
c) und e) 370K

Dosis: a) $1{,}4 \cdot 10^{16}$ $Ar^+$; b) $2{,}7 \cdot 10^{16}$ $Ne^+$;
c) $3{,}2 \cdot 10^{16}$ $Ne^+$; d),e) $6{,}2 \cdot 10^{15}$ $Xe^+$;

Wegen der Kondensationshemmung sind nur Maximumslage und qualitativer Kurvenverlauf einer weiteren Auswertung zugänglich.

Trotz des zunächst sehr eigenartigen Verhaltens der Zerstäubungsmuster der Zn(0001)-Ebene finden diese Effekte eine Erklärung, welche durchaus im Rahmen der an fcc-Metallen gewonnenen Vorstellungen über Zerstäubungsmechanismen liegt. Da diese Erkenntnis schließlich zum Abbruch der Zink-Experimente und zum Übergang auf Magnesium führte, sollen die wesentlichen Gesichtspunkte hier vorweggenommen werden:
Für die anisotrope Emission der (0001)-Ebene sind gemäß Abb.27 die Stoßrichtungen $\langle 0001 \rangle$, $\langle 20\bar{2}3 \rangle$ und $\langle 40\bar{4}3 \rangle$ verantwortlich. Hierbei entsprechen die beiden letzteren einer Zweierstoßemission, während $\langle 0001 \rangle$ der Emission durch einen Ring von 3 Oberflächenatomen zuzuordnen ist. Die relativen Emissionswahrscheinlichkeiten dieser Stoßrichtungen werden durch die Energie- und Richtungsverteilung der Atome in den oberen Atomlagen bestimmt. Hierfür ist entscheidend, in welchen Tiefen das Projektilion seine Energie abzugeben beginnt. Während ein leichtes Ion im Mittel einige Atomlagen durchquert, bevor es einen Stoß mit einem Targetatom erfährt, bei welchem mindestens die Verlagerungsenergie $E_d$ übertragen wird,

$$T \geqq E_d \quad ,$$

verliert ein schweres Ion von der ersten Atomlage ab seine Energie. Da weiterhin Kleinwinkelstreuprozesse bei weitem überwiegen, das primäre Rückstoßatom also nahezu parallel zur Oberfläche angestoßen wird, erhöhen Oberflächenstöße die Wahrscheinlichkeit für Emissionen in große Polarwinkel. Erfolgt der Impulstransport hingegen aus tieferen Schichten an die Oberfläche, wie dies bei den folgenden Stößen schwerer Ionen und vorzugsweise für leichte Ionen der Fall ist, so steigt die Wahrscheinlichkeit für Emissionen um die Oberflächennormale.

Zur Gewinnung eines qualitativen Überblickes kann das einfache Konzept der mittleren freien Projektilweglänge herangezogen werden, welches von ROL /104/ erfolgreich zur Berechnung der Zerstäubungsausbeute von polykristallinen Targets verwandt wurde*. Es soll hier jedoch nicht die Harte-Kugel-Näherung angewandt

---

*Eine kritische Diskussion der Erweiterung dieses Modelles auf Einkristalle findet man bei ONDERDELINDEN /105/.

werden, sondern der Verlagerungsquerschnitt $\sigma_d$ aus einem Potenzpotential

$$V(r) \sim r^{-s} \qquad (3.10)$$

bzw dessen differentiellem Wirkungsquerschnitt (LINDHARD et al./106/)

$$d\sigma = C_s \frac{1}{E^{1/s}} \frac{dT}{T^{1+1/s}} \qquad (3.11)$$

ermittelt und zur Berechnung der mittleren freien Weglänge im Target

$$\lambda = \frac{1}{N \cdot \sigma_d} \qquad (3.12)$$

eingesetzt werden. Nach WINTERBON et al./107/ beschreibt (3.11) mit

$$C_s = \frac{\pi}{2} \cdot \lambda_s \cdot a_B^2 \cdot \left(\frac{m_1}{m_2}\right)^{1/s} \left(\frac{2Z_1 Z_2 e^2}{a_B}\right)^{2/s} \qquad (3.13)$$

das Bremsvermögen und die Projektilbahnlänge mit einer Genauigkeit von 20%, wobei die Potenz s

für Energien $\varepsilon < 0{,}2$ s = 3,

für $8 \cdot 10^{-2} < \varepsilon < 2$ s = 2 zu wählen ist.

Hierin bedeuten

$$\varepsilon = \frac{a_B}{Z_1 Z_2 e^2} \frac{m_2}{(m_1+m_2)} E \qquad \text{reduzierte Energie} \qquad (3.14)$$

$$a_B = 0{,}8853 \frac{a_H}{\sqrt{Z_1^{2/3}+Z_2^{2/3}}} \qquad \text{BOHRscher Abschirmradius mit } a_H = 0{,}529 \text{ Å}$$

$$\lambda_2 = 0{,}327 \qquad \lambda_3 = 1{,}309$$

Die an das Rückstoßatom übertragene Energie T

$$T = T_m \cos^2\alpha \qquad (3.15)$$

$\alpha$...Flugwinkel des Rückstoßatomes zur Einschußrichtung

erreicht bei dem (sehr seltenen) Zentralstoß $\alpha = 0$ ihr Maximum

$$T_m = 4 \frac{m_1 m_2}{(m_1+m_2)^2} E \quad . \qquad (3.16)$$

Integration von (3.11) liefert

$$\sigma_d \equiv \int_{E_d}^{T_m} d\sigma = s \cdot C_s \frac{1}{(E \cdot T_m)^{1/s}} \left[ \left( \frac{T_m}{E_d} \right)^{1/s} - 1 \right] \quad . \qquad (3.17)$$

Setzt man für die Verlagerungsschwelle $E_d$ = 18 eV, so ergibt sich, daß der erste Verlagerungsstoß bei Beschuß mit $E = E_o$ = 20 keV $Ne^+$-Ionen im Mittel in einer Tiefe von 15 Å ($\hat{=}$ 7.Atomlage) stattfindet, wohingegen ein $Xe^+$-Ion der selben Energie bereits zwischen der zweiten bis dritten Atomlage einen Energiebetrag $> E_d$ abgibt. Für diese Oberflächenstöße stehen bis zum Emissionsakt zu wenige Stoßpartner für eine Impulsumkehr zur Verfügung. Bei schweren Ionen ist daher eine stärker ausgeprägte schräge Emission zu erwarten - sowohl bezüglich der isotropen (Untergrund) als auch der anisotropen Emission.

Eine Auflösung der Emissionsmaxima in $\langle 20\bar{2}3 \rangle$ und $\langle 40\bar{4}3 \rangle$ kann wegen der im Vergleich zum räumlichen Abstand großen Halbwertsbreite nicht erwartet werden. Zudem sind die Spot-Intensitäten in $\langle 20\bar{2}3 \rangle$ wegen des geringeren Atomabstandes stets höher (eine Ausnahme bilden nur Zerstäubungen mit Ionenenergien unter 500 eV; hier fand WEHNER an Titan /108/ Maxima um $\vartheta \approx 50^\circ$). Der $\langle 20\bar{2}3 \rangle$-Emissionsverteilung überlagert sich demnach auf der einen Seite die (meist schwache) $\langle 40\bar{4}3 \rangle$-Emission und auf der anderen die (stets starke) $\langle 0001 \rangle$-Zerstäubung. Breite und Intensität jeder

dieser Einzelverteilungen hängen in unterschiedlicher Weise von den Beschußbedingungen ab. Die beobachtete (gemessene) Summenverteilung kann daher stark von der Emissionscharakteristik einer speziellen Stoßrichtung abweichen. In extremer Form zeigt sich dies bei Bestrahlung des auf 100 K gekühlten Zink-Kristalles mit $Ne^+$- oder $Ar^+$-Ionen; hier tritt die ⟨0001⟩-Emission infolge der reduzierten Gitterschwingung so stark hervor, daß ⟨20$\bar{2}$3⟩ nur mehr als Andeutung wahrnehmbar ist, Abb.28. In weniger krassen Fällen äußert sich der Einfluß einer benachbarten Emission nur durch Verschiebung der ⟨20$\bar{2}$3⟩-Spots. Obgleich Verschiebungen des Maximums in diesem Ausmaß (Tab.V) bisher nicht bekannt waren, zeigt eine Analyse der veröffentlichten Niederschlagsmuster der Zn(0001)-Ebene Übereinstimmung mit den hier gefundenen Werten:

ROBINSON & SOUTHERN /33/ finden bei Beschuß mit 4 keV $Ar^+$ - Ionen Spots bei etwa $35^o$;

PEROVIČ /18/ beobachtet nach Bestrahlung mit 10 keV $Ar^+$ - Ionen Niederschlagsmaxima bei $33^o$;

MOLCHANOV et al./60/ messen nach Zerstäubung mit 30 keV $Ar^+$ - Ionen Niederschlagsverteilungen, deren Maximum bei $\vartheta = 28^o$ liegt.

Eine Interpretation der Zink-Zerstäubungsmuster wird durch einen weiteren Effekt sehr erschwert: bei der ⟨0001⟩-Emission kann an die 3 Oberflächenatome so viel Energie übertragen werden, daß auch diese imstande sind, den Kristallverband zu verlassen. Eine näherungsweise Berechnung der an eines der Ringatome abgegebenen Energie T kann mit Hilfe der Impulsnäherung durchgeführt werden

$$T = \frac{A^2}{E_1}\left[\frac{L}{a}\cdot K_o\left(\frac{L}{a}\right)\right]^2 \quad . \tag{3.18}$$

$K_o$... modifizierte Bessel-Funktion
L.... Ringradius

Allerdings überschätzt diese Beziehung den Energietransfer T mit fallender Energie des stoßenden Atomes $E_1$ zunehmend. Aus diesem Grunde wurde der Energieverlust eines zentral auf einen symmetrischen "Ring" stoßenden Atomes berechnet nach einer Bezie-

hung, welche von ANDERSEN & SIGMUND /109/ abgeleitet wurde*. Abb.29 zeigt die Ergebnisse an Zink. Daraus ist zu entnehmen, daß im Energiebereich

$$10\ \text{eV} \lesssim E_1 \lesssim 400\ \text{eV}$$

die an ein Ringatom übertragene Energie die Oberflächenbindung übertrifft, der Ring also gesprengt wird.

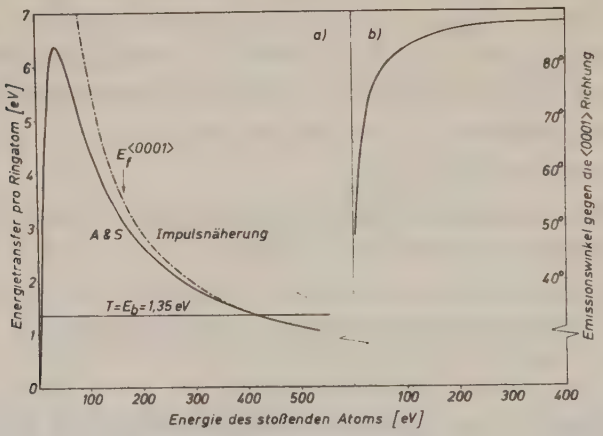



Abb.29: Zentrale ⟨0001⟩-Emission an Zink

a) Energietransfer pro Ringatom in Abhängigkeit von der Energie eines durch den Ringmittelpunkt laufenden Atoms. Berechnet nach (A.I.10) bzw. (3.18)

b) Flugwinkel der abgelösten Ringatome gegen die Oberflächennormale ⟨0001⟩. Berechnet nach (A.I.11) und (A.I.12)

Ein großer Teil der auf diese Weise freigesetzten Atome verläßt den Kristall unter großem Polarwinkel, so daß mit einem weiteren Stoß im Potentialfeld der Oberfläche zu rechnen ist. Eine die Realität der Metalloberfläche berücksichtigende Lösung dieses Streuproblems gestaltet sich jedoch außerordentlich kompliziert:

*Näheres dazu in Anhang A.I.

wegen der niedrigen Relativenergie kann nicht mit voneinander unabhängigen binären Stößen gerechnet werden; aus dem gleichen Grunde darf auch weder die Bindungsenergie der Streuer noch deren anziehender Potentialverlauf vernachlässigt werden; thermische Schwingungen der Oberflächenatome (mit ihrer die Gitterschwingung im Kristallinneren bis mehr als 200% übertreffenden mittleren quadratischen Auslenkung) müssen ebenso in Rechnung gestellt werden wie die Ausbildung von Oberflächenstrukturen.

Die Zerstäubung der Zn(0001)-Ebene stellt sich somit folgendermaßen dar:

zur anisotropen Emission tragen die Stoßrichtungen ⟨0001⟩, ⟨20$\bar{2}$3⟩ und ⟨40$\bar{4}$3⟩ bei; Intensität und Breite hängen von Kristalltemperatur, Projektilmasse und -energie ab. Die meßbare Niederschlagsverteilung ist als Superposition von Einzelverteilungen aufzufassen, so daß z.B. die ⟨20$\bar{2}$3⟩-Emissionscharakteristik durch Entfaltung gewonnen werden muß;

die ⟨0001⟩-Emission ist über einen weiten Energiebereich von einer Sekundäremission begleitet, welche die anisotrope Zerstäubung in einer kaum erfaßbaren Weise verschmiert.

Unter diesen Gesichtspunkten erschien es nicht möglich, die Emissionsverteilung der ⟨20$\bar{2}$3⟩-Stoßrichtung zu bestimmen. Im Sinne der Zielsetzung dieser Arbeit war daher eine Fortsetzung der Zerstäubungsmessungen an Zink wenig erfolgversprechend.

### 3.2.2. Magnesium

Eine der Hauptschwierigkeiten der Bestimmung der $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Emissionsverteilung an Zink war die stets ausgeprägte $\langle 0001\rangle$-Emission. Die Beobachtung von ROBINSON & SOUTHERN /33/, daß unter den hexagonalen Kristallen Magnesium, Zink, Zirkon und Kadmium alle bis auf Mg eine bevorzugte $\langle 0001\rangle$-Emission aufweisen, ließ Magnesium für die geplanten Untersuchungen daher besonders geeignet erscheinen. Die von diesen Autoren erwogene Ursache der Anomalie, wonach das Auftreten einer bevorzugten $\langle 0001\rangle$-Zerstäubung an die Bedingung $m_1 < m_2$ gebunden sein könnte, wurde durch die Zink-Experimente allerdings nicht bestätigt*. Doch kann aus (1.13) leicht abgeschätzt werden, daß eine Sprengung des fokussierenden Ringes bei Mg nicht möglich ist. Damit scheidet ein wesentlicher Unsicherheitsfaktor selbst dann aus, wenn bei den hier verwendeten Projektilenergien eine $\langle 0001\rangle$-Emission festgestellt werden sollte.
Weiterhin weist Mg wegen seines nahezu idealen Achsenverhältnisses

$$c_o/a_o = 1{,}624 \approx \sqrt{\tfrac{8}{3}}$$

in $\langle 20\bar{2}3\rangle$ und $\langle 11\bar{2}0\rangle$ dieselbe Fokussierungsenergie auf, wohingegen bei Zn: $E_f^{\langle 11\bar{2}0\rangle} \doteq 1{,}5\, E_f^{\langle 20\bar{2}3\rangle}$. Schließlich versprach die unmittelbare Nachbarschaft zu Aluminium eine ähnlich passende Gegenüberstellung hcp ⟷ fcc wie die Paarung Cu - Zn.

#### 3.2.2.1. Magnesium(0001)

Alle für die folgenden Versuche verwendeten Mg-Kristalle wurden aus einem Mutterkristall geschnitten. Die Orientierung der so gewonnenen Kristallplättchen wurde mehrfach durch LAUE-Durch- und -Rückstrahlaufnahmen überprüft. Ein Fehler in der azimutalen Aufstellung des (0001)-Kristalles im Beschleuniger kann mit Sicherheit ausgeschlossen werden. Mit der gleichen Gewißheit kann daher festgestellt werden:

---

*vgl. 3.2.1., Abb.28d

die Zerstäubungsmaxima der (0001)-Ebene liegen in der $(11\bar{2}0)$-Azimutalebene und müssen demnach der $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Richtung zugeordnet werden. Eine bevorzugte $\langle 11\bar{2}3\rangle$-Emission wurde nicht beobachtet.

Ein $\langle 11\bar{2}3\rangle$-Emissionsmaximum wäre auch von der Theorie her nicht zu erwarten, da die von FRÈRE /36/ abgeleitete Bedingung für Impulsfokussierung in zick-zack-Gitterrichtung (vgl. Abb.6)

$$\frac{R}{D} \gg \frac{1}{2} + \frac{2\cdot\delta}{D}$$

im Falle von Mg $\langle 11\bar{2}3\rangle$ nur für Energien $< E_b/20$ zu erfüllen ist, die Ablösearbeit eines Oberflächenatomes also garnicht mehr aufgebracht werden kann. Korrelierte Stoßfolgen in $\langle 11\bar{2}3\rangle$ wären damit nur noch durch Hilfsfokussierung des umgebenden Gitters zu "retten". Doch auch dies scheint kaum möglich, da selbst in dem hochsymmetrischen Falle der $\langle 100\rangle$-Stoßfolgen in Kupfer die Fokussierungsenergie nur um den Faktor 10 gegenüber der isolierten Reihe erhöht ist.

Sämtliche im folgenden erwähnten Zerstäubungsmuster der (0001)-Ebene wurden daher im $(11\bar{2}0)$-Azimut vermessen. Die Stoßrichtungen in dieser Ebene können aus Abb.5 oder Abb.27 entnommen werden, wobei in letzterer Darstellung für Mg die Gittergeraden unter einem Winkel von 35,3° bzw. 54,7° zur $\langle 0001\rangle$-Normalen die Kristalloberfläche durchsetzen.

Die beobachteten Niederschlagsmaxima liegen unter einem Polarwinkel von $\vartheta_{max} = 30{,}1^\circ \pm 0{,}9^\circ$, unabhängig von Ionenenergie, -masse und Kristalltemperatur. Hinsichtlich der Konstanz der Spot-Lage verhalten sich Mg-Zerstäubungsmuster somit wie die der fcc-Metalle Aluminium, Kupfer, Silber, Gold - sie unterscheiden sich andererseits darin wesentlich von Zink (vgl. Abb.28).

In Abb.23 wurde bereits ein Beispiel einer Emissionsverteilung der Mg(0001)-Ebene wiedergegeben. Wie daraus und aus den normierten Verteilungen in Abb.30 ersichtlich, fehlt bei Mg tatsächlich ein $\langle 0001\rangle$-Maximum*; im Energiebereich zwischen 10 und 40 keV

---

* Die Existenz eines $\langle 0001\rangle$-Maximums müßte sich durch zunehmende Schichtdicke gegen kleine Polarwinkel hin bemerkbar machen.

konnte weder für $Ne^+$ ($m_1 < m_2$!) noch für $Ar^+$ oder $Xe^+$ ein relatives Minimum des Schichtdickenprofiles zwischen ⟨0001⟩ und ⟨20$\bar{2}$3⟩ festgestellt werden.

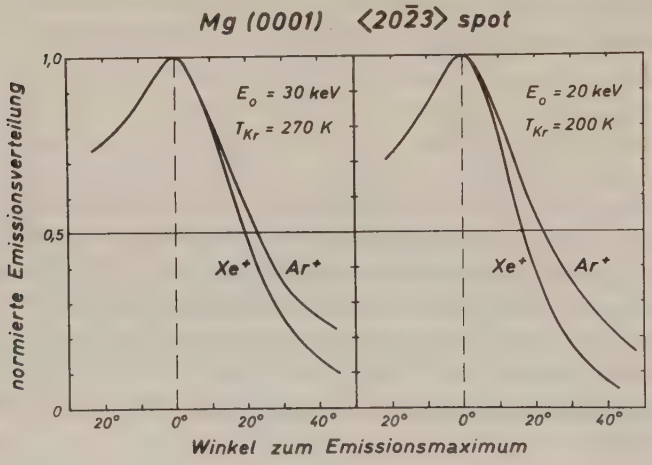


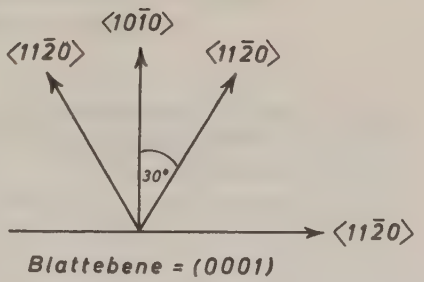

Abb. 30: Emissionscharakteristik der ⟨20$\bar{2}$3⟩-Stoßrichtung, gemessen an einer (0001)-Magnesiumoberfläche
Azimut: (11$\bar{2}$0)
Projektilionen: $Ar^+$, $Xe^+$

Aus später darzulegenden Gründen kann aus diesem Befund jedoch nicht geschlossen werden, daß eine ⟨0001⟩-Emission nicht existiert. Dies wäre auch unverständlich, da nach (1.13) die erforderliche Mindestenergie für eine ⟨0001⟩-Emission bei etwa 3 eV (vgl. Zn: $\approx$20 eV) liegt. Vielmehr ist anzunehmen, daß das schwache, abstoßende Potential der (leichten) Mg-Atome die Oberflächenschicht für einen großen Teil des Rückstoßspektrums sehr transparent erscheinen läßt. Mit anderen Worten, der Dreier-Ring um die ⟨0001⟩-Richtung kann seine fokussierende Rolle nur für den extrem niederenergetischen Teil des Energiespektrums erfüllen. Damit verbreitert sich die Emissionscharakteristik so stark, daß sie zwischen den beiden ⟨20$\bar{2}$3⟩-Emissionen nur mehr als erhöhter Untergrund erscheint.

Kennzeichnend für alle Magnesium-Zerstäubungsmuster ist, daß in der Reihenfolge $Ne^+$, $Ar^+$, $Xe^+$ die Anisotropie der Zerstäubung zunimmt, Abb.30. Dieser Effekt ist nicht nur auf Mg-Oberflächen beschränkt, sondern er wurde auch an der Aluminium(111)-Oberfläche beobachtet (Kap.3.2.3.). Damit stehen diese beiden Elemente in direktem Gegensatz zu Gold, dessen ⟨110⟩-Emissionsverteilung mit steigender Ionenmasse von $Ne^+$ zu $Xe^+$ hin breiter wird. Eine Erklärung für diesen Effekt kann unmittelbar aus dem "Oberflächenmodell" abgeleitet werden*, während er nach dem Fokussonenmodell unverständlich erscheint.
Die Temperaturabhängigkeit der Spot-Breiten ist in Abb.33 dargestellt. Demnach verhält sich auch hierin Mg durchaus "normal", d.h. in Übereinstimmung mit dem Zerstäubungsverhalten kubisch-flächenzentrierter Metalle.

3.2.2.2. Magnesium(10$\bar{1}$0)

Diese Kristalloberfläche gestattet in erster Linie die Untersuchung der ⟨11$\bar{2}$0⟩-Stoßrichtung. Falls fokussierende Stoßfolgen zur anisotropen Zerstäubung einen Beitrag leisten, so sollte dies in ⟨11$\bar{2}$0⟩ der Fall sein.




Zunächst konnte an den Zerstäubungsmustern der (10$\bar{1}$0)-Ebene festgestellt werden, daß die beiden markanten Niederschlagsmaxima im (0001)-Azimut liegen. Sie treten konstant bei einem Polarwinkel von $\vartheta_{max} = 27{,}6^\circ \pm 0{,}5^\circ$ auf. Bei der Zerstäubung der (10$\bar{1}$0)-Ebene dominieren somit die beiden ⟨11$\bar{2}$0⟩-Emissionsrichtungen**
Weiterhin zeigt sich auch hier wieder, daß $Xe^+$-Bombardement eine schärfere Emissionscharakteristik zur Folge hat als Beschuß mit

---

*siehe Abschnitt 4.1., S.95

**Dies ist keineswegs selbstverständlich: ROBINSON & SOUTHERN fanden z.B. an der Zr(10$\bar{1}$0)-Ebene intensive ⟨40$\bar{4}$3⟩-Emission! Vgl. auch Abb.34.

$Ar^+$-Ionen, Abb.31,33. Allerdings ist der Unterschied der $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Halbwertsbreiten wesentlich geringer als der der $\langle 20\bar{2}3\rangle$.

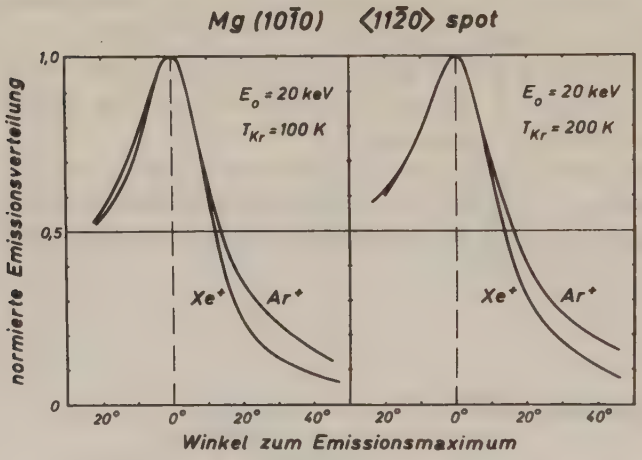



Abb.31: Emissionscharakteristik der $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Stoßrichtung, gemessen an einer (10$\bar{1}$0)-Magnesiumoberfläche
Azimut: (0001)
Projektilion: $Ar^+$, $Xe^+$

Wie bereits mehrfach erwähnt, war es das Ziel der Arbeit, durch Vergleich der $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Emission mit der Zerstäubung in $\langle 11\bar{2}0\rangle$ Aufschluß zu suchen über den Beitrag fokussierender Stoßfolgen. Eine Gegenüberstellung dieser Emissionsverteilungen zeigt Abb.32. Daraus ist ersichtlich, daß die $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Verteilung stets schärfer ist als die entsprechende $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Emission. Dies ist auch deutlich in Abb.33 zu erkennen, in welcher die Temperaturabhängigkeit der Halbwertsbreiten dargestellt ist.

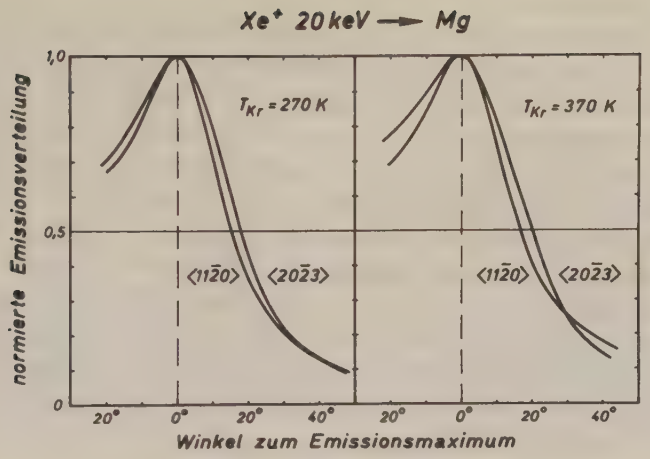



Abb.32: Gegenüberstellung der Emissionscharakteristik der ⟨11$\bar{2}$0⟩- und ⟨20$\bar{2}$3⟩-Stoßrichtungen, gemessen an (10$\bar{1}$0)- und (0001) Magnesiumoberflächen.

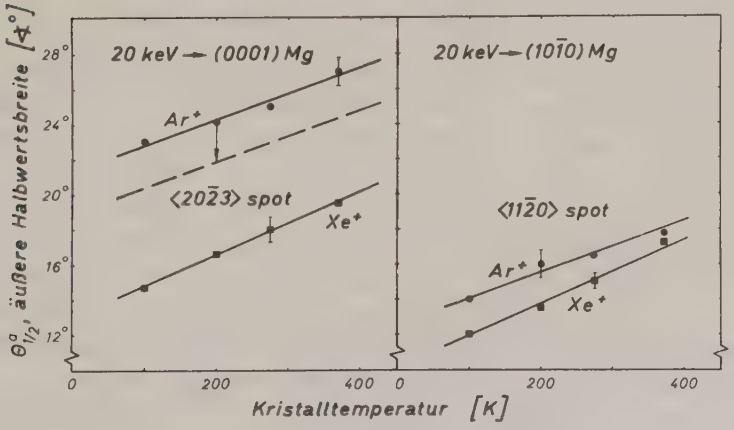



Abb.33: Temperaturgang der Halbwertsbreiten der ⟨20$\bar{2}$3⟩- und ⟨11$\bar{2}$0⟩- Emissionscharakteristik.

Zum Temperaturgang der Halbwertsbreiten selbst ist zu vermerken, daß die an Zink beobachteten "Anomalien" an Magnesium nicht auf treten. Die Halbwertsbreiten steigen mit der Temperatur linear an. Bemerkenswert ist, daß der Anstieg für $\langle 11\bar{2}0\rangle$ und $\langle 20\bar{2}3\rangle$ innerhalb der Fehlergrenze gleich ist. Vom Standpunkt des Fokussonenmodells ist dies verwunderlich, da die mittlere quadratische Schwingungsamplitude für ein Oberflächenatom mehr als 3 mal stärker mit der Temperatur zunimmt als im Kristallinneren /110/. Der Anstieg der $Xe^+$-Geraden beträgt $1{,}8\,\text{Å}^2/100^\circ$ und liegt damit um etwa 30% über den an Gold gemessenen Werten /32/. An beiden Metallen steigt die $Xe^+$-Gerade etwas stärker als die für $Ar^+$. Die Ursache hierfür - und für das unterschiedliche Verhalten der Zink $\langle 0001\rangle$-Emission bei 100 K - liegt wohl in der Ausbildung von sog. thermal spikes /3/,/127/.

Nach den ersten Versuchen an der (0001)-Ebene wurde festgestellt, daß die Targetraumabdeckung die Schärfe der $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Spots leicht beeinflußt: Zerstäubungsmuster, welche bei relativ hohem $O_2$ - Restgasdruck gewonnen wurden (ca.$10^{-7}$ Torr), zeigen eine bis zu $2^\circ$ ($\hat{=}$ etwa 9%) größere Halbwertsbreite. Läge dies an der stärkeren Oxidation des Mg-Niederschlages, so müßte eine Erhöhung der Elektronenenergie in der Elektronensonde eine abweichende Niederschlagsverteilung anzeigen. Für Anregungsspannungen zwischen 8 keV und 14 keV konnte jedoch keine signifikante Änderung festgestellt werden. Dieser Effekt kann daher nicht in der Auswertungsmethode liegen, sondern muß seine Ursache im Zerstäubungsprozess an der Kristalloberfläche haben*. Die demnach im Extremfall zu erwartende geringere, echte (halbe) Halbwertsbreite wurde in Abb.33 durch eine strichlierte Kurve gekennzeichnet. - In späteren Experimenten wurde stets mit Abdeckung gearbeitet. Unter diesen Bedingungen sollte nach Abtragung der ersten Atomlagen durch die Getter-Wirkung der Mg-Atome bereits nach weniger als 10% der Gesamtdosis der $O_2$-Restgasdruck bis unter $10^{-10}$ Torr abgefallen sein.

---

*vgl. auch 3.1.2.3. Eine weitere Bestärkung dieser Auffassung bringen die Al(111)-Zerstäubungsmuster in 3.2.3. Hier hängt die Breite der $\langle 110\rangle$-Emissionsverteilung nicht vom $O_2$-Restgasdruck ab, trotz der starken Oxidation des Al-Niederschlages.

Zerstäubungsexperimente an der $(10\bar{1}0)$-Oberfläche bieten weiterhin die Möglichkeit, auch Abschätzungen über die $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Emission zu machen. Hierfür ist lediglich das Kristallplättchen um seine Normale um 90° zu drehen, so daß nun die Emission in die $(11\bar{2}0)$-Azimutalebene verzerrungsfrei auf dem zylindrischen Auffänger wiedergegeben wird. Für einen Vergleich mit der $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Emission hat man jedoch in Rechnung zu stellen, daß jedes Oberflächenatom Endpunkt einer $\langle 11\bar{2}0\rangle$ Gittergeraden ist, während für eine $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Emission nur jedes zweite in Frage kommt.

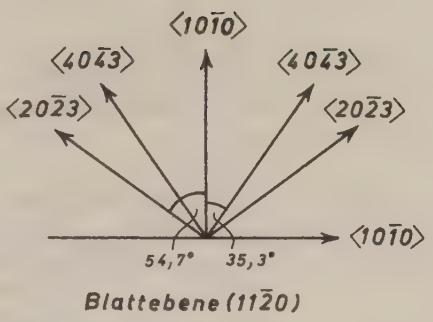



Abb.34 zeigt Schichtdickenprofile zweier Bestrahlungen der $(10\bar{1}0)$-Ebene, wobei bis auf die azimutale Orientierung alle Versuchsparameter konstant gehalten wurden. Die strichlierte Kurve entspricht einer $\cos\vartheta$-Verteilung, die den beiden Emissionscharakteristiken an den Ausläufern angepaßt wurde. Ihr Flächeninhalt im Intervall $7{,}5^\circ \leq \vartheta \leq 75^\circ$ ist etwa gleich dem unter der $(11\bar{2}0)$-Kurve und macht etwa 60% der Emission in die (0001)-Ebene aus. Damit beträgt der Anteil der anisotropen Emission an der gesamten Zerstäubung in den oberen Halbraum kaum mehr als 20 - 30%, eine Feststellung, welche bereits SMITH et al. an Kupfer- und Molybdänkristallen machten /40/,/111/.

Gegenüber der $\langle 11\bar{2}0\rangle$- ist die $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Emission nach Ausweis von Abb.34 stark reduziert. Als Ursache hierfür käme einerseits ein Fokussoneneinfluß in Frage; andererseits werden unterschiedliche Spot-Intensitäten selbst an kristallographisch gleichwertigen Stoßrichtungen beobachtet, wenn sich deren Polarwinkel unterscheiden /20//38/,/112/. Man sieht dies auch deutlich an den Zerstäubungsmustern der $(11\bar{2}0)$-Ebene.

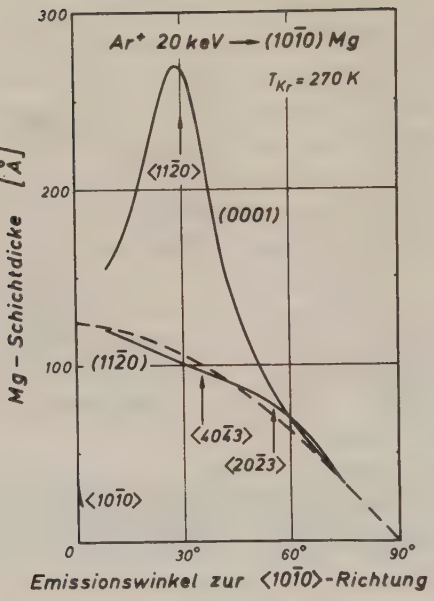


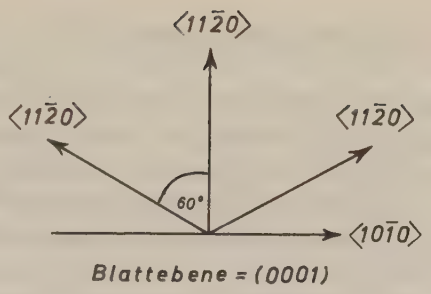

Abb.34: Niederschlagsverteilung in zwei zueinander orthogonalen Ebenen nach Zerstäubung einer (10$\bar{1}$0)-Kristalloberfläche mit 20 keV $Ar^+$-Ionen
Ionendosis: $9{,}4 \cdot 10^{+16}$ $Ar^+$
Strichlierte Kurve: $\cos\vartheta$-Verteilung

### 3.2.2.3. Magnesium(11$\bar{2}$0)

Zerstäubungsexperimente an dieser Prismenfläche sollten die Untersuchung von ⟨11$\bar{2}$0⟩-Emissionen bei Polarwinkeln von sowohl $0^\circ$ als auch $60^\circ$ gestatten. Die beiden schrägen Fokussierungsrichtungen eignen sich allerdings schlecht für systematische Versuche zur Klärung der ⟨11$\bar{2}$0⟩-Zerstäubung: bei diesen großen Emissionswinkeln gewinnen Abschattungen an Unebenheiten /113/ der Kristalloberfläche sowie ablenkende Stöße an Oberflächenatomen /114/, /115/ an Bedeutung. Facettierung der Beschußfläche* verstärkt

*vgl. 3.3.

beide Effekte /116/. Es überrascht daher nicht, daß die beiden Nebenmaxima um etwa 4° nach innen verschoben sind, Abb.35. Auch der in 3.2.2.2. beschriebene Einfluß des $O_2$-Restgasdruckes ist an dieser Ebene stärker zu beobachten. Daher wurden an der (11$\bar{2}$0)-Oberfläche nur einige wenige Testbestrahlungen mit 20 keV $Ar^+$-Ionen durchgeführt. In diesen Fällen war die zentrale ⟨11$\bar{2}$0⟩-Emission stets dominierend.



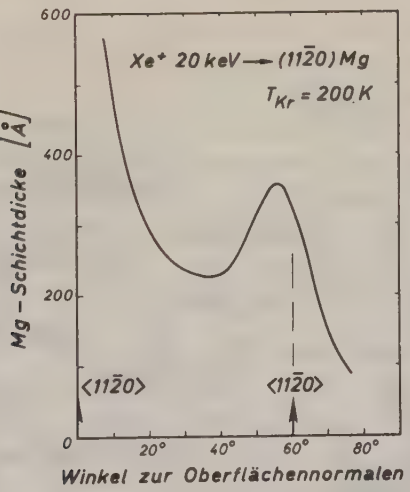




Abb.35: Niederschlagsprofil nach Zerstäubung einer (11$\bar{2}$0) - Mg-Kristalloberfläche mit 20 keV $Xe^+$-Ionen
Ionendosis: $9{,}4 \cdot 10^{+16}$ $Xe^+$

Man könnte auch an dieser Ebene durch Variation der azimutalen Lage des Targetkristalles die Zerstäubung in ⟨20$\bar{2}$3⟩ untersuchen. Da diese Stoßrichtung jedoch ebenfalls unter 60° zur Oberflächennormalen liegt, sind die erwähnten Verzerrungen auch hier zu erwarten. Für einen weiteren Vergleich ⟨11$\bar{2}$0⟩ - ⟨20$\bar{2}$3⟩ wurde daher ein anderer Weg eingeschlagen:

3.2.2.4. Magnesium(36$\bar{9}$8)

NELSON & THOMPSON /20/,/24/ wiesen als erste darauf hin, daß Emissionsverteilungen verschiedener Stoßrichtungen nur dann einen unmittelbaren Vergleich zulassen, wenn sie symmetrisch zur Oberflächennormalen und Einschußrichtung liegen. Nur in diesen Fällen herrschen für die zu vergleichenden Emissionsprozesse die selben Bedingungen. Es wurde daher aus dem Mg-Kristall ein Plättchen geschnitten, aus dessen größter Fläche $\langle 11\bar{2}0\rangle$ und $\langle 20\bar{2}3\rangle$ jeweils unter $30^{\circ}$ zur Normalen austreten. Die von diesen beiden Richtungen aufgespannte Ebene trägt die Indizes $(\bar{3}30\bar{2})$; Abb.36 zeigt die Atomanordnung in und knapp unter dieser Ebene.

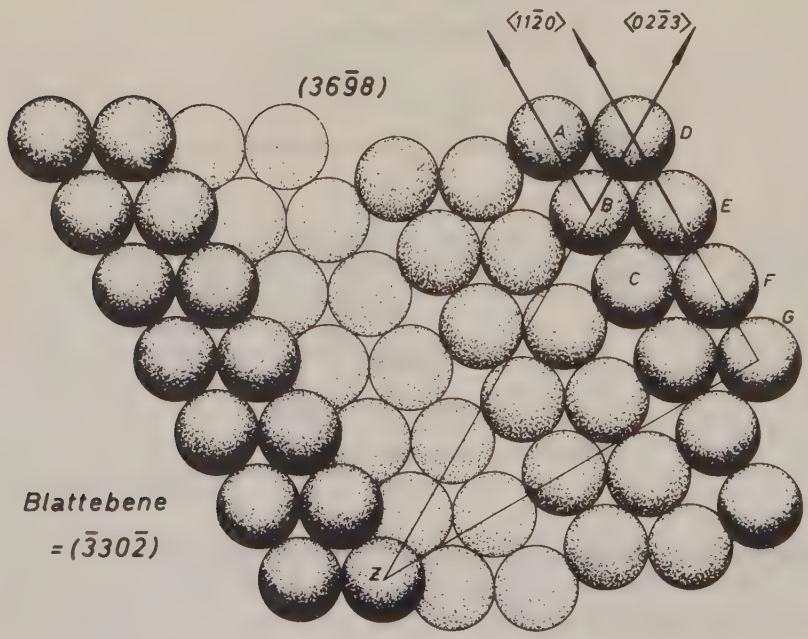



Abb.36: Atomanordnung in der $(\bar{3}30\bar{2})$-Ebene eines idealen hcp-Gitters

$\overline{AB} = \overline{BD} = a_o \qquad \overline{DZ} = 6a_o$

Die Indizes der Oberfläche lauten (36$\bar{9}$8). Aus dieser Ebene können in ⟨11$\bar{2}$0⟩-Richtung sowohl Atom A als auch D emittiert werden, während für ⟨20$\bar{2}$3⟩-nur Atom D in Frage kommt*. Bei dem sukzessiven Abtragen der Oberflächenschicht gelten die selben Stoßverhältnisse natürlich auch für Atome B,C bzw. E,F,G. Besitzen die Atome unterhalb der Oberflächenlage eine isotrope Geschwindigkeitsverteilung, so trägt die Reihe DEFG je zur Hälfte zu ⟨11$\bar{2}$0⟩ und ⟨20$\bar{2}$3⟩ bei, wohingegen Atome aus ABC anisotrop nur in ⟨11$\bar{2}$0⟩ emittiert werden können. In diesem Falle ist ein Verhältnis der Spot-Intensiäten

$$S^{\langle 11\bar{2}0\rangle} / S^{\langle 20\bar{2}3\rangle} = 3 \qquad (3.19)$$

zu erwarten. Ein Wert größer als 3 wäre demnach als Gittereinfluß auf den Energietransport im Festkörper zu werten.

Abb.37 zeigt zwei Zerstäubungsprofile der (36$\bar{9}$8)-Oberfläche, vermessen in der ($\bar{3}$30$\bar{2}$)-Azimutalebene. Man erkennt einen scharf ausgeprägten ⟨11$\bar{2}$0⟩-Spot, auf der ⟨20$\bar{2}$3⟩-Seite hingegen nur einen flachen Höcker. Der optische Eindruck der Niederschlagsmuster ist stets der einer jede andere Emission weit übertreffenden ⟨11$\bar{2}$0⟩-Zerstäubung; eine photometrische Auswertung würde die ⟨2023⟩-Emission stark unterbewerten. Auf ebenen Auffängern schließlich ist außer einem ungewöhnlich scharfen ⟨11$\bar{2}$0⟩-Maximum keine weitere Struktur des Niederschlages erkennbar.

Zur Erfassung der einzelnen anisotropen Zerstäubungsanteile muß zunächst der Untergrund abgezogen werden. Näherungsweise kann dies auf dieselbe Weise geschehen wie in 3.2.2.2., nämlich durch Anpassung einer Kosinusverteilung an die Ausläufer der Niederschlagsprofile, Abb.38. Es ergibt sich ein random-Anteil von etwa 55% in der ($\bar{3}$30$\bar{2}$)-Ebene. In Übereinstimmung mit den Ergebnissen an der (10$\bar{1}$0)-Kristalloberfläche muß also auch aus den Messungen an der (36$\bar{9}$8)-Ebene auf einen stark überwiegenden "Untergrund" an der Gesamtemission geschlossen werden.

Nach Abzug des Untergrundes verhalten sich die Flächen unter den Meßkurven

$$F^{\langle 11\bar{2}0\rangle} / F^{\langle 20\bar{2}3\rangle} = 3{,}7 \pm 0{,}2 \qquad (3.20)$$

* Fehlt Atom D infolge eines vorangegangenen Emissionsprozesses, so emittieren beide Reihen nur in ⟨11$\bar{2}$0⟩.

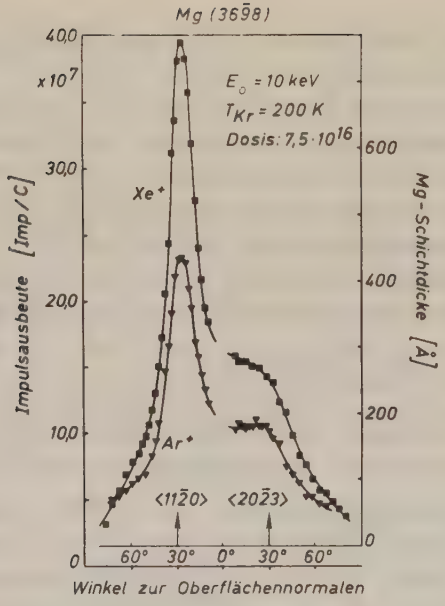



Abb.37: Schichtdickenprofil einer (36$\bar{9}$8)-Kristalloberfläche nach Beschuß mit 10 keV $Ar^+$- und $Xe^+$-Ionen, vermessen im ($\bar{3}30\bar{2}$)-Azimut.

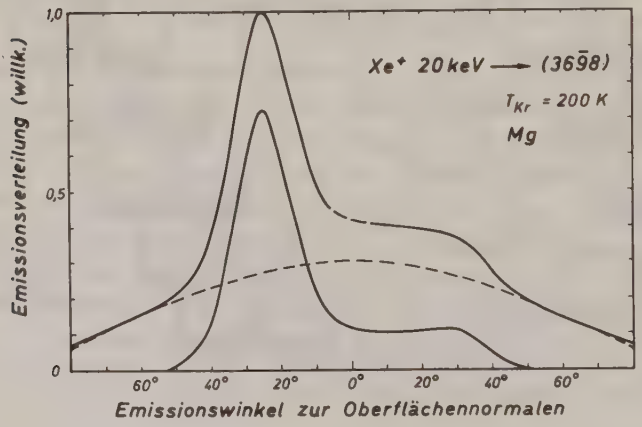



Abb.38: Zerstäubungsprofil einer (36$\bar{9}$8)-Kristalloberfläche nach Beschuß mit 20 keV $Xe^+$-Ionen.

Untergrundkorrektur durch Subtraktion einer $\cos^n\vartheta$-Verteilung (strichlierte Kurve).

Azimut: ($\bar{3}30\bar{2}$)

Da für eine rotationssymmetrische GAUSS-Verteilung die Spot-Intensität

$$S^{\langle hkil\rangle} \sim \Theta_{1/2}^{\langle hkil\rangle} \cdot F^{\langle hkil\rangle} , \qquad (3.21)$$

gilt für das Verhältnis der Intensitäten der $\langle 11\bar{2}0\rangle$- und $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Stoßrichtungen:

$$\frac{S^{\langle 11\bar{2}0\rangle}}{S^{\langle 20\bar{2}3\rangle}} = \frac{(\Theta_{1/2}\cdot F)^{\langle 11\bar{2}0\rangle}}{(\Theta_{1/2}\cdot F)^{\langle 20\bar{2}3\rangle}} . \qquad (3.22)$$

Setzt man in diese Beziehung die an den Ebenen (0001) und $(10\bar{1}0)$ gefundenen Spot-Breiten ein*, so ergibt sich ein Intensitätsverhältnis von knapp über 3 - ein Resultat, welches für eine isotrope Geschwindigkeitsverteilung der Atome unterhalb der Oberflächenlage erwartet würde. Es gibt jedoch Gründe zu der Annahme, daß die größere Breite der $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Spots der (0001) - Ebene zum Teil auf Ursachen zurückzuführen ist, welche mit Impulsfokussierung in keinem Zusammenhang stehen**. D.h., eine Übernahme dieser Halbwertsbreiten in (3.22) würde zu einer Unterbewertung eines eventuellen Fokussonenanteils führen. Eine obere Grenze für den Beitrag korrelierter Stoßfolgen an der anisotropen Emission stellt andererseits (3.20) dar ($\Theta_{1/2}^{\langle 11\bar{2}0\rangle} = \Theta_{1/2}^{\langle 20\bar{2}3\rangle}$), wonach ein Fokussonenanteil etwa 25% über der Gleichverteilung liegt.

Auffallend an Abb.37 und 38 ist weiterhin die große Schärfe der $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Emission. Dies liegt vor allem an dem steilen Abfall auf der Innenseite der Emissionscharakteristik, also kleinen Werten $\Theta_{1/2}^{i}$ (nach Abzug des Untergrundes ist $\Theta_{1/2}^{a} \sim \Theta_{1/2}^{i}$) - ein Hinweis darauf, daß sowohl

der $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Spot der (0001)-Ebene als auch
der $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Spot der $(10\bar{1}0)$-Ebene

an der Innenseite von der Emission um die jeweilige Oberflächennormale beeinflußt wird. Daß ein fehlendes $\langle 0001\rangle$-Maximum nicht

---

*zu entnehmen etwa aus Abb.23

**siehe Abschnitt 4.1., S.96

notwendigerweise die Nichtexistenz der ⟨0001⟩-Emission bedeutet, wurde bereits in 3.2.2.1. festgestellt; hierauf wird in Verbindung mit den Aluminium-Zerstäubungsmustern nochmals eingegangen. Doch auch die $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Zerstäubung der $(10\bar{1}0)$-Ebene ist breiter - eine Erklärung hierfür findet sich im Oberflächenmodell*.

Die $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Emissionscharakteristik der $(36\bar{9}8)$-Ebene ist jedoch nicht nur an der inneren Flanke steiler als die äquivalenten Spots der $(10\bar{1}0)$-Ebene, sondern auch an der äußeren Flanke. Allerdings ist hier der Unterschied wesentlich geringer, er beträgt knapp $2^{\circ}$. Die verminderte äußere Halbwertsbreite kann auch aus Abb.39 abgelesen werden. In dieser Darstellung wurde die Energieabhängigkeit der äußeren spot-Breiten gemeinsam mit den an den oben erwähnten Ebenen gemessenen Werten aufgetragen**.

Interessant ist in diesem Zusammenhang ein Vergleich mit den an Gold /43/ gemessenen Halbwertsbreiten: ohne Untergrundkorrektur ist für $Xe^{+}$-Beschuß $\Theta^{a}_{1/2}$ bei Magnesium nur um etwa $1^{\circ}$ breiter als bei Gold***.

Von allen untersuchten Magnesium-Kristallflächen weist die $(36\bar{9}8)$-Ebene die höchste Zerstäubungsrate auf. Dies geht aus den Abb.23 und 27 hervor. Da an $(36\bar{9}8)$ keine ausgeprägten channeling-Effekte zu erwarten sind, überrascht die hohe Ausbeute nicht weiter /105/.

Zurückkommend auf die eingangs erwähnten Forderungen von NELSON & THOMPSON muß festgestellt werden, daß es sich hierbei um Minimalbedingungen handelt.

Z.B. wies SCHULZ /43/ darauf hin, daß Spots gleicher Intensität, aber unterschiedlicher Schärfe i.a. zu einer subjektiven Unterbewertung der breiteren Verteilung führen. Wegen des hohen "Untergrundes" (SMITH et al./111/) wird es weiterhin mit steigender Halbwertsbreite zunehmend schwieriger, den anisotropen Anteil abzutrennen. Unterscheiden sich die Spots

---

* Emission durch Potentiallücken in der Oberflächenschicht - Mechanismus gemäß Abb.3b.

** Die mit eingezeichneten Geraden besitzen alle den selben Anstieg; sie sollen lediglich einen Vergleich erleichtern und haben keine weitere Bedeutung.

*** Man beachte aber hierbei 4.1!

auch noch in ihren Intensitäten, so wird die Bestimmung der Emissionscharakteristik zu einem meßtechnischen Problem. Im vorliegenden Fall, Abb.37,38, ließ sich eine Abschätzung der Spot - Ausbeuten nur mehr deshalb durchführen, weil die Breiten der $\langle 20\bar{2}3\rangle$- und $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Verteilungen nicht stark voneinander abweichen*. Schließlich sollten die Polarwinkel der zu vergleichenden Stoßrichtungen nicht zu groß ( $\lesssim 45^{\circ}$) sein, um Verzerrungen der Emissionsverteilung durch Oberflächeneffekte in beherrschbarem Rahmen zu halten /114/,/115/.

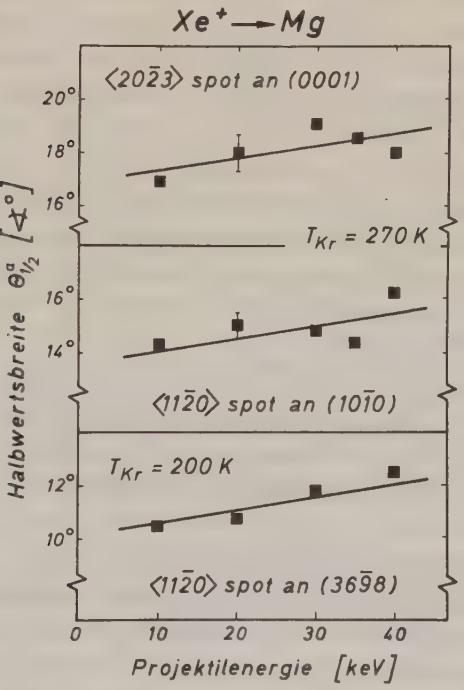



Abb.39: Energieabhängigkeit der Halbwertsbreiten $\Theta^{a}_{1/2}$ der $\langle 20\bar{2}3\rangle$- und $\langle 11\bar{2}0\rangle$ -Emissionscharakteristiken bei Beschuß mit $Xe^{+}$-Ionen.

*Die große Breite der $Ar^{+}\langle 20\bar{2}3\rangle$-Spots an (0001) hat andere Ursachen. Vgl. 4.1.

### 3.2.3. Aluminium

Als Nachbarelement zu Magnesium sollte Aluminium eine unmittelbare Gegenüberstellung des Zerstäubungsverhaltens kubisch-flächenzentrierter Kristalle mit dem hexagonaler Metalle ermöglichen. Trotz der großen Bedeutung, die ⟨110⟩-Emissionsverteilungen an Al für theoretische Überlegungen /21/,/33/ zukommt, gibt es nur wenige diesbezügliche Untersuchungen /24/,/43/,/115/,/117/. Wegen der starken Oxydation der Niederschlagsmuster ist leider in allen zitierten Arbeiten mit Ausnahme der letzten mit Verzerrungen zu rechnen. Bei SCHULZ /43/ findet man Demonstrationen einiger Scheineffekte, welche alle ihre Ursache in Oxydation und/oder Verzerrung durch ebene Auffänger haben. Daraus war klar, daß eine optische Vermessung der Al-Zerstäubungsmuster eine einwandfreie Bestimmung der Emissionsverteilung nicht zuläßt.

Da in /43/ eine deutliche Verbreiterung der Verteilungen mit zunehmender Ionenmasse festgestellt worden war, dieser Befund der in 4.1. zu gebenden Interpretation der Mg-Zerstäubungsmuster jedoch direkt widerspricht, wurden nach Abschluß der Mg-Experimente auch einige Zerstäubungsmessungen an einer Al(111)-Kristalloberfläche durchgeführt.

Ein Beispiel für ein Schichtdickenprofil in der (110)-Azimutalebene gibt Abb.40. Hierzu ist zunächst festzustellen, daß der ⟨110⟩-Spot gut in der kristallographischen Richtung liegt, während auf der gegenüberliegenden Seite ein Maximum auftritt, welches gegen ⟨100⟩ um etwa $12^{\circ}$ nach innen verschoben ist. Ein ⟨111⟩-Niederschlagsmaximum wurde nicht beobachtet.

Vergleicht man die Emissionsverteilungen des Al⟨110⟩-Spots mit der $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Emissionscharakteristik an Mg, so stellt man eine weitgehende Übereinstimmung fest, Abb.40,41, - ein Ergebenis, welches sowohl vom Fokussonenstandpunkt aus, als auch im Oberflächenmodell verständlich erscheint. In beiden Fällen wird die Spot-Breite wesentlich durch das Verhältnis $E_f/E_b$ bestimmt. Für Al und Mg ergeben sich hierfür nahezu gleiche Werte:
unter Verwendung von (1.11) wird in Abschnitt 4.2. (S.98)
$E_f \approx 2E_b$ gefunden.

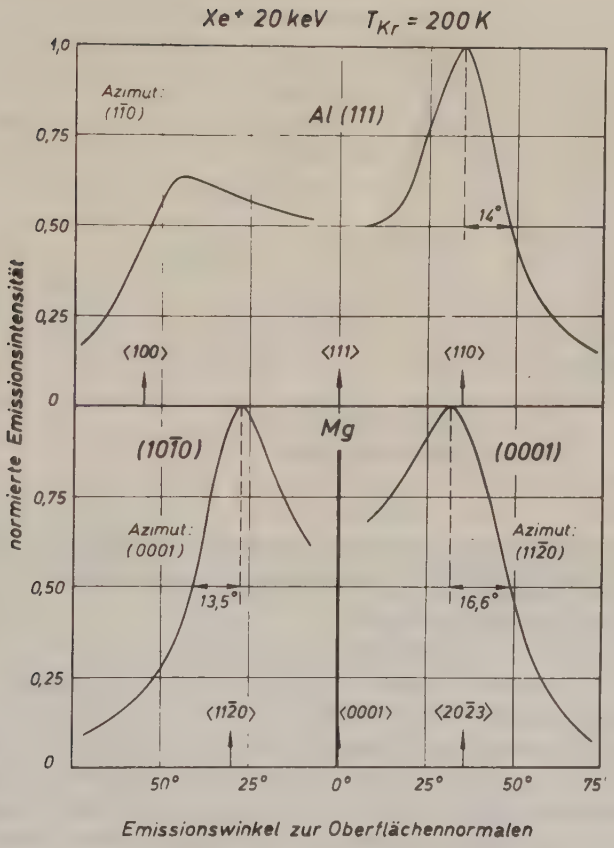



Abb.40: Vergleich der Emissionscharakteristik einer Al(111) - Kristalloberfläche mit ⟨11$\bar{2}$0⟩- und ⟨20$\bar{2}$3⟩-Emissionsverteilungen an Magnesium

Weiterhin zeigen die Zerstäubungsmessungen an Aluminium dieselbe Abhängigkeit von der Projektilmasse wie Magnesium: $\Theta^a_{1/2}$ liegt bei $Ar^+$-Beschuß um etwa $2^o$ über den entsprechenden $Xe^+$-Spot-Breiten. Die von SCHULZ /43/ beobachtete größere Schärfe der $Ne^+$ - Niederschlagsverteilungen muß daher einem Oxydationseffekt zuge-

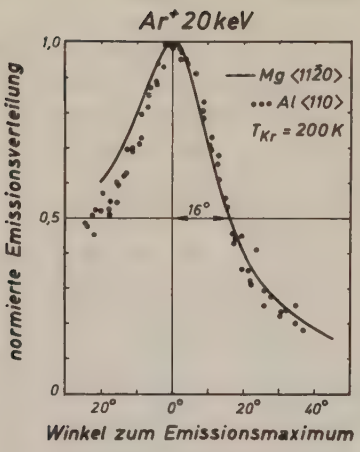



Abb.41: Vergleich der Emissionsverteilungen einer ⟨11$\bar{2}$0⟩-Stoßrichtung in Magnesium und einer ⟨110⟩-Stoßrichtung in Aluminium (Meßpunkte aus 3 Niederschlagsmustern)
Kristalloberflächen: Mg(10$\bar{1}$0)
Al(111)

schrieben werden*. Andererseits könnte die in jener Arbeit gefundene Verbreiterung der Niederschlagsverteilungen mit steigender Energie doch echt sein: eine Variation der Projektilenergie im Bereich von 10 - 40 keV ändert die Zerstäubungsrate eines (111)-Kristalles weit weniger als das Anwachsen der Projektilmasse von 20 auf 130. Sehr wahrscheinlich nimmt die Al-Ausbeute mit steigender Energie bereits wieder ab, wie dies bei Kupfer und Gold der Fall ist /105/. - Jedenfalls würde eine steigende Tendenz von $\Theta^a_{1/2}$ an Al mit den Messungen an Mg und deren Deutung in 4.1. übereinstimmen.

---

*Bei geringeren Bestäubungsraten oxydiert ein größerer Teil des Niederschlagsmusters und wird damit von dem Photometer nicht mehr erfaßt - der Spot erscheint schärfer. Vgl. 2.2.

Im Gebiet kleiner Emissionswinkel verhält sich die Al-Zerstäubungsverteilung abweichend von Mg: vor allem die Innenflanke der ⟨20$\bar{2}$3⟩-Emission übertrifft hier deutlich die Al ⟨110⟩-Emission. Dies kann dahingehend gedeutet werden, daß die ⟨0001⟩-Emission bei Mg stärker ausgeprägt ist als die ⟨111⟩-Emission an Al. Eine hcp ↔ fcc - Gegenüberstellung an den Zerstäubungsmustern von Cu(111)- und Zn(0001)-Kristallen zeigt

$$s^{\langle 0001\rangle} > s^{\langle 111\rangle} \qquad (3.23)$$

noch deutlicher. Selbst an Zirkon (Z = 40) und Kadmium beobachteten ROBINSON & SOUTHERN ⟨0001⟩-Niederschlagsmaxima. Eine bevorzugte ⟨111⟩-Emission hingegen konnten diese Autoren an Al und Cu ebensowenig feststellen wie WEYSENFELD an Ag /114/.

Dem stehen allerdings die Arbeiten von NELSON & THOMPSON /20/, /24/ entgegen, in welchen insbesondere an Al eine deutlich ausgeprägte ⟨111⟩-Emission gefunden wurde. Es läßt sich jedoch zeigen*, daß die ⟨111⟩-Niederschlagsmaxima in jenen Arbeiten durch Verzerrung an ebenen Auffängern zustande kommen können. Schließlich konnte in keiner Zerstäubungsuntersuchung, in welcher zylinder- oder halbkugelförmige Auffänger benutzt wurden, /16/, /18/, /42/, /43/, /115/, /118/, an Al ein ⟨111⟩-Niederschlagsmaximum gefunden werden - auch in der vorliegenden Arbeit nicht (vgl. Abb.40).

Aus (4.23) muß andererseits gefolgert werden, daß zur Beschreibung der Emission in Stoßrichtungen mit Hilfsfokussierung der LEHMANN - SIGMUND -Mechanismus allein nicht ausreicht. Denn danach erfolgt die Emission bevorzugt durch die Potentiallücken der Oberflächenschicht - diese sind aber für Mg und Al bzw. Cu und Zn nahezu gleich. Ein Unterschied zwischen fcc- und hcp - Stukturen oder ⟨111⟩ und ⟨0001⟩ entsteht erst nach Hinzunahme einer 3. Atomlage zu den beiden Oberflächenschichten. D.h., daß für die ⟨0001⟩-Emission mindestens noch diese 3. Lage einen Beitrag liefert.

---

* Ein eindrucksvolles Beispiel für die Vortäuschung eines zentralen Emissionsmaximums auf ebenen Auffängern geben ROBINSON & SOUTHERN /115/.

## 3.3. Oberflächenuntersuchungen

Eine unter Ionenbeschuß stehende Festkörperoberfläche wird nicht Atomlage für Atomlage sukzessive abgetragen, sondern es bilden sich terrassenförmige Strukturen (sog. Facetten) und pfeiler- bzw. kegelartige Gebilde aus (Abb.42). Während letztere großteils auf Fremdatome an der Oberfläche /119/ und Einschlüsse im Kristallgitter /120/ zurückzuführen sind, ist die Facettierung der Oberfläche eine für die Kristallorientierung charakteristische Erscheinung /116/,/120/,/121/. Welche Facettenebene an welcher Oberfläche auftritt, ist allerdings zur Zeit auch an fcc-Kristallen nicht ganz geklärt*.

An $(10\bar{1}0)$- und $(11\bar{2}0)$-Kristallen von Zink und Kadmium fanden ROBINSON & SOUTHERN /34/ unverständliche Niederschlagsmuster und Zerstäubungsausbeuten. Sie führten dies auf die Ausbildung besonderer Oberflächenstrukturen zurück. Magnesium verhielt sich in dieser Hinsicht normal.

Auch in der vorliegenden Arbeit gibt es keinen Grund für die Annahme einer vom Magnesium-Gitter abweichenden Oberflächenstruktur:

Beschußstellen auf (0001)- und $(10\bar{1}0)$-Kristalloberflächen zeigten im Raster-Elektronenmikroskop** von den Nominalebenen verhältnismäßig gering abweichende Facettten, Abb.42b,c. Pfeiler wie in Abb.42a wurden nur selten beobachtet. Die $(36\bar{9}8)$-Oberfläche allerdings wird durch das Ionenbombardement stärker verändert; zwar verlaufen die hufeisenartig umrandeten Abschrägungen ebenfalls unter flachem Winkel zur Oberfläche, Abb.42d, doch führt die Überlagerung der Ränder mit steigender Ionendosis im Zentrum der Beschußstelle zu einer starken Zerklüftung der Oberfläche.

Trotz der teilweise erheblichen Facettierung ist im submikroskopischen Bereich i.a. doch mit niedrigindizierten Oberflächenebenen zu rechnen:

---

*siehe z.B. Facettierung der (100)-Ebene in /116/,/121/,/122/

**Die Aufnahmen wurden im Institut für Raster-Elektronenmikroskopie von Herrn Dr. H. KLINGELE angefertigt.

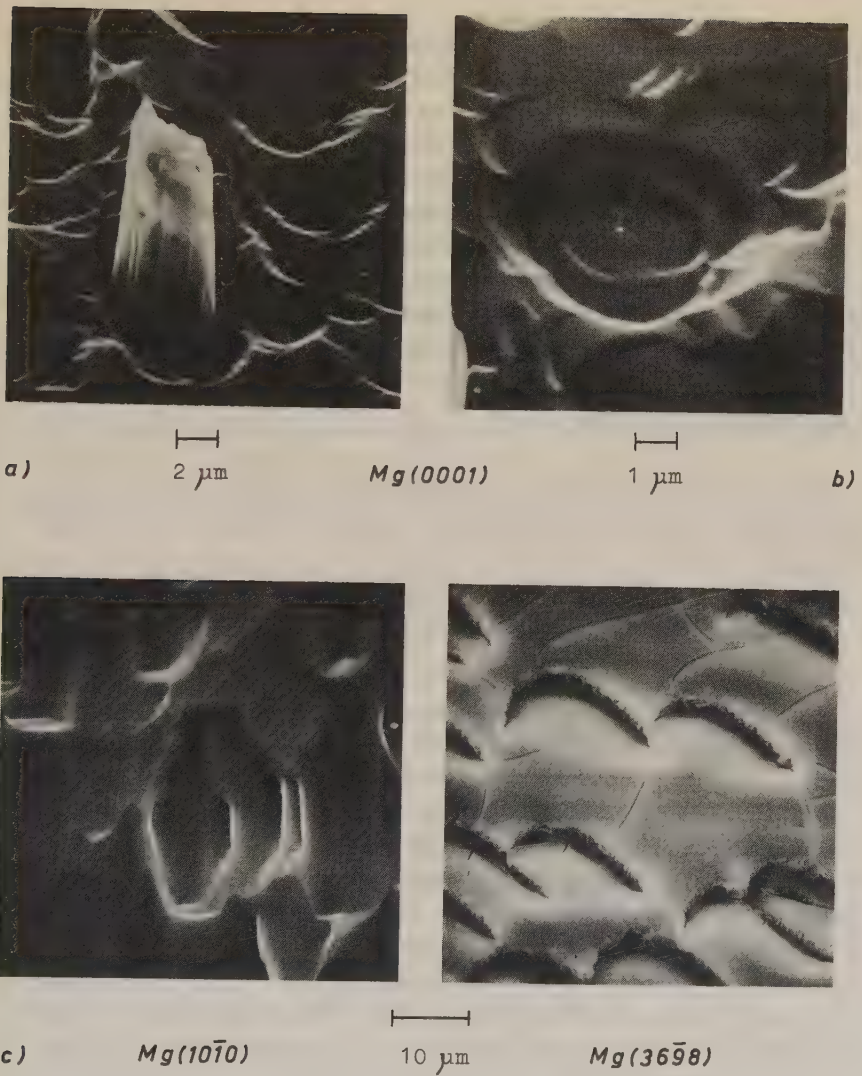



Abb.42: Verschiedene Mg-Oberflächen nach Ionenbombardement im Rasterelektronenmikroskop beobachtet.

Bei den Aufnahmen a), b), c) war der Kristall unmittelbar nach dem Ionenbeschuß mit einer etwa 200 Å dicken Au-Schicht überdampft worden. Im Falle 42d lag der Kristall vor der Aufnahme mehrere Wochen an Luft; ohne Au-Überdampfung.

die Leerstellenproduktionsrate einer bestimmten Gittergeraden beträgt unter den in der vorliegenden Arbeit gegebenen Zerstäubungsbedingungen (Projektilstromdichte 5 $mA \cdot cm^{-2}$, Zerstäubungsausbeute 5 Atome/Ion) an Magnesium ca. $10^2$ pro Sekunde; die Leerstellenplatzwechselfrequenz hingegen liegt bei Raumtemperatur und einer Aktivierungsenergie für Leerstellenwanderung*, $E_{0d} \approx 0{,}3$ eV, bei etwa $10^8$ $s^{-1}$. Für die Festkörperoberfläche verbleibt somit zwischen den einzelnen Emissionsakten genügend Zeit für die Einnahme des Zustandes geringster freier Energie. - So kann z.B. auch entlang der Abschrägungen in Abb.42b eine diskrete Anordnung von dichtesten Atomlagen angenommen werden**.

Es sei noch erwähnt, daß der von STEWART & THOMPSON /120/ beschriebene Prozess der Stufenwanderung in Abb.42a,b gut erkennbar ist:

eine Stufe wandert infolge der höheren Zerstäubungsrate bei schräger Ionenstrahlinzidenz quer über die Kristalloberfläche, bis Überlagerungen auftreten;
der Stufenwinkel von etwa 45° steht in Übereinstimmung mit dem von GÜNTHERSCHULZE & TOLLMIEN /123/ gemessenen Kegelbasiswinkel von 51° (nach einer in /120/ abgeleiteten Beziehung sollte er etwa 80° betragen). Beide Winkel sind nach /120/ gleich dem Ioneneinfallswinkel, bei dem maximale Zerstäubungsausbeute erreicht wird. (Für 50°-Inzidenz ergibt sich eine etwa 2-fach höhere Ausbeute als bei nomalem Einfall.)

---

*Die Aktivierungsenergie für Selbstdiffusion in der Oberfläche ist für eine Reihe von Metallen etwa halb so groß wie im Kristallinneren.

**Man beachte, daß die kleinste in Abb.42b auflösbare Struktur Abmessungen von etwa $10^3$ Å besitzt. Die auf die Emissionsverteilung Einfluß nehmenden Oberflächenbereiche sind um etwa 1/200 kleiner.

## 4. Diskussion der Zerstäubungsmessungen

### 4.1. Ergänzende Erklärungen

An der Zink(0001)-Ebene wurde eine Abhängigkeit der Lage des Emissionsmaximums von Masse und Energie der Projektilionen gefunden. Dieser Effekt steht, wie in 3.2.1. bereits ausgeführt, in Einklang mit anderen Arbeiten an hcp-Kristallen. Doch auch Zerstäubungsuntersuchungen an polykristallinen Targets sowie an kubisch-flächenzentrierten Kristallen bestätigten die in 3.2.1. gegebene Deutung:

bei polykristallinen Metallen weist die Emissionsverteilung im Bereich niedriger Projektilenergien (<1-5 keV, je nach Ionenmasse) eine erhöhte Zerstäubung in große Polarwinkel auf. Mit steigender Energie nähert sie sich einer $\cos \vartheta$ - Verteilung. Bei hohen Energien wird eine bevorzugte Emission senkrecht zur Targetoberfläche beobachtet; diese sogenannte Überkosinus-Emissionsverteilung ist umso ausgeprägter, je höher die Projektilenergie und je niedriger die Projektilmasse*/17/,/124/;

noch deutlicher ist dieser Effekt an Einkristallen zu erkennen. Hier steigt die Spot-Intensität für Stoßrichtungen mit kleinem Winkel zur Oberflächennormalen mit wachsender Projektilenergie und fallender -masse /9/,/18/,/38/,/117/,/125/,/126/. Dies wurde bereits von KOEDAM /38/ dahingehend interpretiert, daß die Impulsverteilung der Oberflächenatome um die Normale mit der Tiefe der zur Zerstäubung beitragenden Projektilstöße zunimmt. Besonders ausgeprägt kann der Übergang von bevorzugter schräger Emission zu bevorzugter Emission in kleine Polarwinkel im Energiegebiet von 500 eV bis etwa 5 keV beobachtet werden. Zu einer Verschiebung der Niederschlagsmaxima bei fcc-Kristallen kommt es nur deshalb nicht, weil die wichtigsten Stoßrichtungen hier Winkel miteinander einschließen,

---

*siehe hierzu auch:
G.BETZ et al., Int.J.Mass Spectrom. Ion Phys. 6, 451 (1971)

die im Vergleich zur Breite der Einzelemissionen groß sind. - Nicht so in hexagonalen Kristallen (vgl. Abb.27)! Hier kann die Überlagerung der Einzelverteilungen so stark werden, daß in der Summenverteilung nur ein Maximum zwischen den Gitterrichtungen erscheint.

Magnesium zeigt den störenden Einfluß von Nachbarstoßrichtungen auf die $\langle 20\bar{2}3\rangle$-Emission weit weniger als Zink. Dies liegt vor allem an der größeren Offenheit des Magnesium-Kristallgitters. Dadurch erhöht sich die mittlere freie Weglänge $\lambda$ des Projektils, verschwindet die $\langle 40\bar{4}3\rangle$-Emission und vermindert sich das Fokussierungsvermögen des Dreierringes um die $\langle 0001\rangle$-Stoßrichtung so stark, daß diese Emission nicht mehr in eine Vorzugsrichtung gebündelt wird. So läßt sich z.B. mit der im Anhang A.I. abgeleiteten Beziehung (A.I.8) für die Brennweite $f^{\langle 0001\rangle}$ des Atomringes um $\langle 0001\rangle$ zeigen daß

$$f_{Mg}^{\langle 0001\rangle} = 6 \cdot f_{Zn}^{\langle 0001\rangle} \quad ,$$

die Brechkraft des Magnesium-Ringes also auf 1/6 reduziert ist. Die große Transparenz dieses Ringes hat weiterhin zur Folge, daß bei einer (nahezu zentralen) $\langle 0001\rangle$-Emission der Energietransfer zur Auflösung des Ringes nicht ausreicht.

Die hervorstechende Eigenschft der $\langle 20\bar{2}3\rangle$- und $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Emissionsverteilung an Magnesium ist, daß deren Breite mit steigender Ionenmasse von $Ne^+$ zu $Xe^+$ hin abnimmt. Die Tatsache, daß dieser Effekt nicht nur an sämtlichen Magnesium-Kristalloberflächen, sondern auch bei der Al$\langle 110\rangle$-Emission auftritt, weist darauf hin, daß dessen Ursache im Elementarprozess der Zerstäubung liegen muß:

Die Breite einer Emissionsverteilung wird im Oberflächenmodell bestimmt durch

a) das Verhältnis $E_f/E_b$ und
b) das Energiespektrum der Atome in der Stoßkaskade.

Die Größe $E_f/E_b$ ist eine für den Kristall charakteristische Größe und damit von Projektilmasse und -energie unabhängig. Auf das Energiespektrum hingegen kann durch Variation der Beschußbedin-

gungen Einfluß genommen werden. So ist der Energietransfer pro Stoß proportional der maximal übertragbaren Energie $T_m$ (3.15). Die Massenabhängigkeit von $T_m$, (3.16), ist in Abb.43 dargestellt. Daraus ist zu ersehen, daß der maximale Energietransfer auf ein Magnesium(Aluminium-)-Atom von $Ne^+$ zu $Xe^+$ hin abnimmt, bei Beschuß von Gold mit diesen Ionen hingegen ansteigt. In dem gleichen Sinne verhalten sich auch die spot-Breiten. Dies steht in Einklang mit dem Oberflächenmodell, wonach ein flacher Abfall im Energiespektrum breitere Emissionsverteilungen zur Folge hat als eine steile Abnahme. Denn ein flacher Abfall, d.h. ein stärker ausgeprägter Anteil höherenergetischer Atome, ist gerade unter Beschußbedingungen mit hohem $T_m$ zu erwarten*.

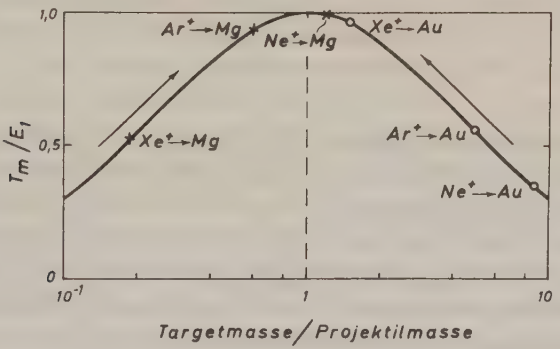



Abb.43: Massenabhängigkeit der maximal übertragbaren Energie $T_m$. Die beiden Pfeile weisen in Richtung zunehmender spot-Breiten;
linker Ast: Beschuß von Magnesium und Aluminium (vorliegende Arbeit)
rechter Ast: Beschuß von Gold (nach /32/).

Damit ist auch verständlich, weshalb an der (0001)-Ebene die $Ar^+$-$Xe^+$-Differenz der $\langle 20\bar{2}3 \rangle$-Halbwertsbreiten größer ist als an den spots aller anderen Ebenen (vg. Abb.34): die bei $Ar^+$-Beschuß erhöhte mittlere Energie der Magnesium-Atome vermindert das

*siehe hierzu auch FARMERY & THOMPSON /49/

(bei Magnesium ohnehin schwache) Selektionsvermögen der Oberflächenschicht; insbesondere das relative Potentialmaximum zwischen 2 Atomen des Ringes um die ⟨0001⟩-Stoßrichtung ($\times$ in Abb.28) vermag auf die Bahn der gegen die Oberfläche angestoßenen Atome nur einen geringen Einfluß zu nehmen. Da die Lage dieses Maximums von einem Ebenenpaar zum anderen um 180° alterniert, kommt es zu einer teilweisen Überlappung der reinen ⟨20$\bar{2}$3⟩-Emission mit dem unfokussierten Anteil der ⟨0001⟩-Emission. - Auch bei $Xe^+$-Bombardement kann daher nicht ausgeschlossen werden, daß die wahre Differenz der ⟨11$\bar{2}$0⟩- und ⟨20$\bar{2}$3⟩-Halbwertsbreiten noch geringer ist als aus Abb.32 und 33 hervorgeht (dort $<$ 20%).
Für die Abschätzung des Fokussonenbeitrages bedeutet dies dann, daß gemäß (3.22) der oberen Anteilsgrenze mehr Gewicht zukommt. Danach ergibt sich für die anisotrope Emission ein Fokussonenanteil von 25%. Hierbei wurde die gesamte Abweichung von der isotropen Impulsverteilung der Atome unterhalb der Oberfläche fokussierenden Stoßfolgen zugeschrieben.

Es ist hingegen nicht gelungen, eine Erklärung für das bei leichten und schweren Metallen gegenläufige Verhalten der Halbwertsbreiten im Fokussonenmodell der Zerstäubung zu finden. Wollte man die von SCHULZ /43/ an Gold beobachtete Spot-Verschärfung mit fallender Ionenmasse als erhöhten Anteil weitreichender Fokussonen deuten, so müßte dies auch für die Emissionsverteilungen von Mg und Al zutreffen; dem widerspricht jedoch der experimentelle Befund der vorliegenden Arbeit .

---

* Das gleiche Argument trifft auch zu für das an Au /127/ beobachtete Anwachsen des Untergrundes mit steigender Ionenmasse.

## 4.2. Fokussonen in Aluminium bzw. Magnesium?

Die in Abschnitt 3.2. dargelegten Beispiele der $\langle 11\bar{2}0\rangle$-, $\langle 20\bar{2}3\rangle$- und $\langle 110\rangle$-Emissionsverteilung von Magnesium bzw. Aluminium zeigen, daß in diesen beiden Metallen fokussierende Stoßfolgen einen geringen Beitrag zur Zerstäubung leisten. Dieses Ergebnis widerspricht nicht notwendigerweise dem Fokussonenmodell der Zerstäubung. Sollte sich herausstellen, daß Fokussonen in solch "offenen" Kristallen wie Magnesium und Aluminium nicht existieren, so sind die aus den Resultaten des Abschnittes 3. allein* zu ziehenden Schlußfolgerungen nur ein Beweis für die Arbeitsfähigkeit des Oberflächenmodelles. Erst wenn sich zeigt, daß entlang der $\langle 110\rangle$- bzw. $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Stoßgeraden der beiden Metalle korrelierte Stoßfolgen möglich sind, muß das Fokussonenmodell als hauptverantwortlicher Zerstäubungsmechanismus verworfen werden. Von entscheidender Bedeutung hierfür sind

die Fokussierungsenergie
der Fokussonenenergieverlust pro Stoß.

Zur Berechnung der Fokussierungsenergie nach Beziehung (1.11) müssen die BORN-MAYER-Parameter A und a bekannt sein. In der vorliegenden Arbeit wurde ausnahmslos der in /35/ vorgeschlagene BORN-MAYER-Radius $a = 0{,}219$ Å benützt**. Er liegt an der oberen Grenze der für Metalle angegebenen Werte /35/,/49/, ist aber um etwa 20% kleiner als der von ABRAHAMSON /128/ aus der THOMAS-FERMI-DIRAC-Theorie abgeleitete BORN-MAYER-Radius; d.h. das hier verwendete Potential fällt steiler ab. Begründen läßt sich dies insofern, als ABRAHAMSON das Potential freier, neutraler Atome berechnete***, wohingegen in Metallen die Stoßpartner als Ionen im Potentialfeld des Metallgitters vorliegen.

Mit (1.9) ergibt sich damit für Aluminium

$$A = 2{,}5\cdot 10^3 \text{ eV} \qquad \text{und mit (1.11)}$$

$$E_f^{\langle 110\rangle} = 3{,}2 \text{ eV} \approx E_b$$

---

* vgl. aber 4.3.

** zur Ordnungszahlabhängigkeit von a siehe /35/,/128/

*** Zu Einwänden gegen diese Rechnungen siehe /129/,/130/

Mit dieser niedrigen Fokussierungsenergie lassen sich die vergleichsweise scharfen ⟨110⟩-Emissionsverteilungen weder im Oberflächen- noch im Fokussonenmodell beschreiben. Die Ursache der Diskrepanz ist in einem Versagen von (1.9) zur Berechnung von A für Elemente niedriger Ordnungszahl zu suchen. Hierfür spricht auch, daß

dieselbe Abschätzung der Potentialkonstanten, die schließlich zu (1.9) führte, mit der von NEELY* und ISELER et al.* gemessenen Aluminium-Verlagerungsschwelle $E_d$ = 16 eV einen zweifellos zu hohen Wert, nämlich $A^{Al} = 15 \cdot 10^3$ eV, ergibt (vgl. $A^{Cu} = 8{,}2 \cdot 10^3$ eV);

nicht einzusehen ist, weshalb $A^{Cu} \approx 3 \cdot A^{Al}$ sein soll (nach (1.9)), wohingegen Bindungsenergie, Verlagerungsschwelle, Leerstellenbildungs- und Leerstellenwanderungsenergie bei Al nur um 10% bis 40% unter den entsprechenden Werten von Kupfer liegen.

Im folgenden wird daher mit einem gegenüber Kupfer um 25% erniedrigten Wert

$$A^{Al} = 6{,}1 \cdot 10^3 \text{ eV}$$

gerechnet, ein Potential also angenommen, welches um den Faktor 2,5 über (1.9) liegt. (1.11) liefert damit eine Fokussierungsenergie

$$E_f^{\langle 110 \rangle} = 7{,}4 \text{ eV} \quad .$$

Setzt man diesen Wert, bzw. $E_f/E_b = 2{,}2$ in die von LEHMANN & SIGMUND /28/ abgeleitete Beziehung für die Halbwertsbreiten von Emissionsverteilungen

$$\Theta_{1/2} \doteq \frac{1}{2} \frac{1}{1+\left(\frac{E_f}{E_b}\right)^{1/2}} \quad , \qquad (4.1)$$

so folgt daraus $\Theta_{1/2} = 11{,}5^\circ$, in guter Übereinstimmung mit den gemessenen Werten (nach Abzug des cos-Untergrundes ergibt sich z.B. aus Abb.41 $\Theta_{1/2} = 10{,}5^\circ$).

---

*Ref./6/, S.214

Es liegt nahe, auch für Magnesium die Beziehung (1.9) mit einem Faktor 2,5 zu versehen:

$$A^{Mg} = 5{,}4 \cdot 10^3 \text{ eV} \quad .$$

Gerechtfertigt wird diese Annahme weiterhin durch die Feststellung aus 3.2.3., wonach die Breiten der Mg$\langle 11\bar{2}0\rangle$- und Al$\langle 110\rangle$-Emissionsverteilungen nahezu gleich sind

$$\Theta_{1/2}^{\langle 11\bar{2}0\rangle Mg} \doteq \Theta_{1/2}^{\langle 110\rangle Al} \quad .$$

Für die Fokussierungsenergie in Magnesium ergibt sich

$$E_f^{\langle 11\bar{2}0\rangle} = E_f^{\langle 20\bar{2}3\rangle} = 3{,}2 \text{ eV} \qquad E_f/E_b = 2{,}1$$

Für die aus den folgenden Abschätzungen zu ziehenden Schlüsse ist die Wahl der Potentialparameter A,a, von geringer Bedeutung, solange im Auge behalten wird, daß

a) mit $E_f \approx E_b$ keines der beiden Zerstäubungsmodelle die beobachteten Emissionscharakteristiken zu beschreiben vermag;
b) die Nichtexistenz des Mg$\langle 0001\rangle$-Emissionsmaximums nur verständlich ist, wenn das Potentialminimum des Dreier-Ringes um $\langle 0001\rangle$ flach und tief verläuft, da anderenfalls der Ring auf den Großteil der um die $\langle 0001\rangle$-Richtung angestoßenen Atome fokussierend wirken würde.

Die oben angegebenen Fokussierungsenergien liegen in dem durch a) und b) abgesteckten Bereich - und damit im Maximum des Energiespektrums zerstäubter Atome. In Aluminium und Magnesium kommt es somit häufiger zur Anregung von Fokussonen mit maximaler Startenergie* als in Kupfer oder Gold.

---

* Von großer Bedeutung ist in diesem Zusammenhang ein Ergebnis aus der Arbeit von DUESING & LEIBFRIED /131/, wonach der Fokussierungsparameter $\Lambda$ im Bereich kleiner Winkel ($\Theta \leq 10^0$-$20^0$) annähernd winkelunabhängig ist. $\Theta \neq 0$ an $E = E_f$ bedeutet demnach keineswegs Defokussierung, wie dies aus (1.6) folgen würde!

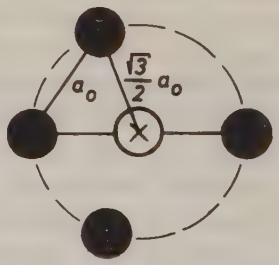
Als zweite, für den Beitrag fokussierender Stoßfolgen entscheidende Größe wurde der Fokussonenenergieverlust angeführt. Der Energietransfer an statische Nachbaratomreihen wurde von LEIBFRIED /25/ für ⟨110⟩-Stoßfolgen in fcc-Gittern berechnet. Für Aluminium ergibt sich danach

$$\Delta E_{stat}^{\langle 110\rangle}\Big|_{E=E_f} = 8\cdot 10^{-2}\ \text{eV/Stoß} \quad .$$

Berücksichtigung der thermischen Schwingungen der benachbarten Atomreihen ergab an Kupfer etwa eine Verdoppelung des Energieverlustes (SANDERS & FLUIT /132/). Überträgt man dieses Ergebnis auf Aluminium, so wird

$$\Delta E^{\langle 110\rangle}\Big|_{E=E_f} \doteq 2\cdot \Delta E_{stat}\Big|_{E=E_f} = 1{,}6\cdot 10^{-1}\ \text{eV/Stoß} \quad .$$

Dies ist um etwa eine Größenordnung weniger als für ⟨110⟩-Fokussonen in Kupfer! Noch geringer ist der Energieverlust für ⟨11$\bar{2}$0⟩-Fokussonen in Magnesium. Zur Berechnung von $\Delta E_{stat}^{\langle 11\bar{2}0\rangle}$ kann wie in /25/ vorgegangen werden, da die Nachbaratomreihen in gleichem Abstand von der Stoßfolge angeordnet sind. Allerdings bilden sie kein regelmäßiges Viereck (siehe nebenstehende Skizze). Es ergibt sich



Blattebene = (11$\bar{2}$0)

$$\Delta E_{stat}^{\langle 11\bar{2}0\rangle} = 2\cdot E_f\cdot e^{-\frac{a_o}{2a}}\left\{e^{\frac{a_o - x}{a}} - 1\right\} \qquad (4.1)$$

mit

$$x = a_o\cdot\sqrt{\frac{3}{4} + \left(\frac{a}{a_o}\right)^2\cdot \ln^2\left(\frac{E_f}{E}\right)}$$

und für Magnesium an $E = E_f$ damit

$$\Delta E \Big|_{E=E_f} = 2 \cdot 1{,}6 \cdot 10^{-2} \text{ eV/Stoß} = 5 \cdot 10^{-2} \text{ eV/Stoß} \quad .$$

Maschinenrechnungen von v. JAN & NELSON /33/ zur Bestimmung des Anteils fokussierender Stoßfolgen am Zerstäubungsprozess ergaben, daß hierfür den Größen $\Delta E/E_b$ bzw. $E_f/\Delta E$ die maßgebende Rolle zukommt*. Diesen Rechungen zufolge ist ein Beitrag weitreichender Stoßfolgen nur in Fällen $E_f/\Delta E < 10$ von untergeordneter Bedeutung. Die entsprechenden Werte für Aluminium und Magnesium lauten 42 bzw. 65 (vgl. Cu: $\frac{36}{1,4} = 26$). Damit sollte allein der Anteil von Stoßfolgen mit mehr als 5 fokussierenden Stößen etwa 20% betragen - mit Fokussonen in Mg und Al ist also durchaus zu rechnen!

In den Maschinenrechnungen nicht berücksichtigt ist ein Mechanismus des Energieverlustes, welcher vor allem für die beiden hier betrachteten Metalle von Wichtigkeit sein kann: ein mit $E_f = 7{,}4$eV startendes Fokusson bewegt sich in Aluminium mit knapp der doppelten Schallgeschwindigkeit. Bei solch niedrigen Energien ist eher mit kollektiven Gitterwechselwirkungen zu rechnen als mit einer Folge von binären Stößen. D.h. mit abnehmender Energie gewinnen Phononenanregungen für den Fokussonenenergieverlust zunehmend an Bedeutung. Eine grobe Abschätzung hierfür kann mit Hilfe einer Beziehung durchgeführt werden, welche von LIDIARD /133/ für ein sich in einem Kristallgitterkanal bewegendes Atom abgeleitet wurde. Danach ergibt sich für ein ⟨110⟩-Fokusson in Aluminium

$$\Delta E = 0{,}32 \cdot \frac{1}{E} \text{ eV/Stoß} \quad . \qquad (4.2)$$

Für $E = E_f$ liegt damit der Energieverlust durch Schallquantenanregung bei etwa 1/4 des Verlustes durch Anlauf gegen das Potential der Nachbaratomreihen. Im Rahmen der LIDIARDschen Näherung verhindern Phononenanregungen somit die Ausbildung fokussierender Stoßfolgen nicht.

---

*Der Energieverlust durch thermische Schwingungen der Atome in der Stoßfolge ist in den Maschinenrechnungen enthalten.

## 4.3. Vergleich mit Elementen höherer Ordnungszahl

Um zu prüfen, ob die anisotrope Emission als Fokussoneneffekt zu verstehen ist, schlug SILSBEE /21/ u.a. vor, die ⟨110⟩-Emissionsverteilungen von Aluminium und Gold miteinander zu vergleichen; in letzterem Falle ("...where the core size is much smaller relative to the cell size...") sollte nach SILSBEE ein Fokussoneneinfluß von untergeordneter Bedeutung sein. Die Durchführung dieser Gegenüberstellung scheiterte bisher an einer zuverlässigen Schichtdickenbestimmung der Al-Niederschlagsprofile. Mit Hilfe der in 3.2.3. gegebenen Beispiele von Al⟨110⟩-Emissionscharakteristiken ist dieser Vergleich nun möglich. Zieht man hierfür Niederschlagsmuster heran, die unter Beschußbedingungen mit gleicher maximal übertragbarer Energie gewonnen wurden (Z.B.: $Xe^+ \rightarrow$ Al, $Ar^+ \rightarrow$ Au aus /43/), so ergibt sich

$$\Theta_{1/2}^{Al\langle 110\rangle} = 1{,}8 \cdot \Theta_{1/2}^{Au\langle 110\rangle}$$

Hierbei wurde der Untergrund nicht abgezogen; die reine Al⟨110⟩-Emissionscharakteristik dürfte um etwa 60% breiter sein als Au⟨110⟩. In Anbetracht der bei fast gleicher Gitterkonstanten 6-fach höheren Ordnungszahl von Gold erscheint dieser Unterschied gering*.

SCHULZ & SIZMANN /32/ kamen nach umfangreichen Untersuchungen der Au⟨110⟩-Emissionsverteilung zu dem Schluß, daß das Oberflächenmodell die anisotrope Zerstäubung von Au mindestens ebensogut beschreibt wie das Fokussonenmodell.

ROBINSON & SOUTHERN /34/ fanden keine prinzipiellen Unterschiede in den Niederschlagsmustern von Magnesium und Zirkon (Z=40); und wenn Abweichungen auftraten, so ließen sie sich im Fokussonenmodell nicht erklären.

Unterstellt man in NELSONs Untersuchungen an $\alpha$-Uran-Einkristallen** ein Spot-Intensitätsverhältnis von $S^{\langle 100\rangle} : S^{\langle 021\rangle} = 3$, so

---

*Die Fokussierungsenergie $E_f^{\langle 110\rangle}$ in Au wird mit 42 eV /130/ bzw. 167 eV /49/ angegeben.

**Ref. /8/, S.249

dominiert auch an diesem schweren Element die Stoßrichtung mit Fokussierung nicht in dem Maße wie in jener Arbeit angegeben.

Da sich somit für die anisotrope Emission von Metallen mittlerer bis hoher Ordnungszahl kein Verhalten feststellen läßt, welches

im Oberflächenmodell weniger verständlich wäre als im Fokussonenmodell, und welches

von dem der leichten Metalle grundlegend abweicht,

kann die bevorzugte Emission in dichtest gepackte Gitterrichtungen nicht als Fokussoneneffekt gewertet werden. Denn die Emissionscharakteristik der $\langle 20\bar{2}3\rangle$- und $\langle 11\bar{2}0\rangle$-Stoßrichtungen in Magnesium sowie der $\langle 110\rangle$-Stoßrichtung in Aluminium ist im Fokussonenmodell der Zerstäubung nicht zu verstehen.

Der Fokussonenanteil an der Gesamtzerstäubung ist wegen des hohen random-Beitrages aus Messungen der Emissionsverteilung schwer abzuschätzen; für Magnesium liegt er nach 3.2.2.4.bei knapp 10% - vorausgesetzt der (mit 70% /111/ angenommene) random-Anteil enthält keine in der Oberfläche defokussierten Fokussonen. Doch selbst wenn die Anzahl der die Oberfläche fokussiert bzw. defokussiert durchsetzenden Stoßfolgen gleich sein sollte, bleibt der Fokussonenanteil von zweitrangiger Bedeutung. - Nähere Auskunft hierüber ist aus dem Grad der Übereinstimmung zwischen gemessenen /105/,/134/ und berechneten /105/,/134/,/135/ Zerstäubungsausbeuten von Einkristallen zu erwarten.

A.I. Hilfsfokussierung in ⟨0001⟩ -Richtung von hcp-Kristallen

Im folgenden werden die Fokussierungseigenschaften symmetrischer Dreier-Ringe beschrieben. Eine Emission durch solche Ringe findet statt in ⟨0001⟩ -Richtung hexagonaler Kristalle sowie in ⟨111⟩ -Richtung bei fcc-Metallen.

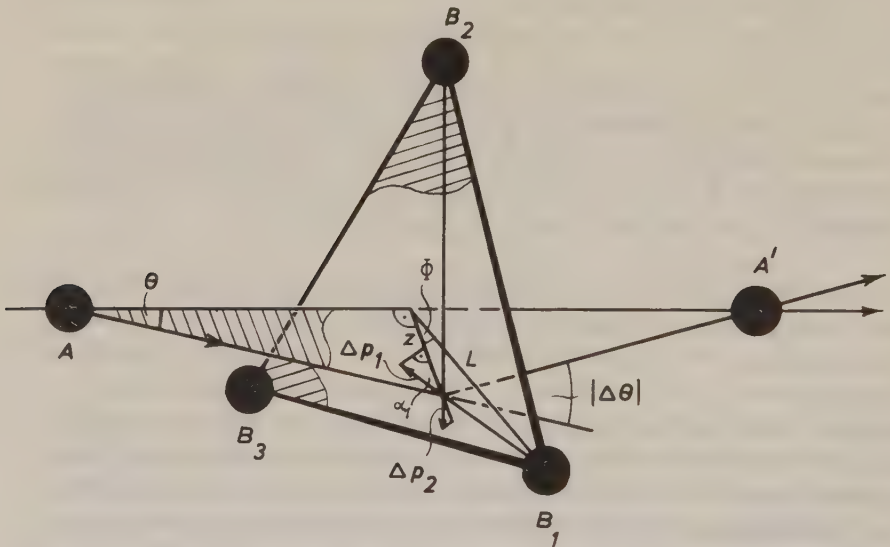



Abb. A.I.1: Bahnablenkung eines Atoms beim Durchtritt durch einen symmetrischen Ring aus 3 Atomen gleicher Masse. Ablenkung durch Atom $B_3$ nicht eingezeichnet.

Das Konzept der Ableitung folgt insoweit der Theorie der Hilfsfokussierung von NELSON & THOMPSON /20/, als der Stoß mit den Ringatomen in der Impulsnäherung*

$$|\Delta\Theta| = \frac{1}{\sqrt{2mE}}\left[\Delta p_1 \cdot \cos\alpha_1 - \Delta p_2 \cos\alpha_2 - \Delta p_3 \cos\alpha_3\right] \qquad \text{(A.I.1)}$$

* NELSON & THOMPSON leiteten teils analytisch teils numerisch eine Beziehung für die Impulsänderung des gestreuten Teilchens ab. Wegen der größeren Klarheit und der von LEHMANN & LEIBFRIED /136/ durchgeführten Fehlerabschätzung wird hier jedoch die bereits von BRINKMAN /137/ abgeleitete Beziehung A.I.2. benützt.

mit

$$\Delta p_i = A \sqrt{\frac{2m}{E}} \cdot \frac{b_i}{a} \cdot K_o\left(\frac{b_i}{a}\right) \quad , \qquad \text{(A.I.2)}$$

ein eventuell nachfolgender Stoß in der Reihe mit Hilfe der Harte-Kugel-Näherung berechnet wird. Beschränkt man sich auf kleine Startwinkel $\Theta$, so ergeben sich für die Stoßparameter $b_i$

$$b_1 = L\left(1-\frac{z}{L}\cos\phi\right) \qquad b_{2,3} = L\left[1-\frac{z}{L}\cos\left(120^\circ \pm \phi\right)\right] \qquad \text{(A.I.3)}$$

und deren Projektionswinkel $\alpha_i$ auf die Radialrichtung

$$\cos\alpha_1 = \cos\phi\left(1+\frac{z}{L}\cos\phi\right) - \frac{z}{L}$$

$$\cos\alpha_{2,3} = \frac{z}{L} - \cos\left(120^\circ \pm \phi\right)\left[1+\frac{z}{L}\cos\left(120^\circ \pm \phi\right)\right] . \qquad \text{(A.I.4)}$$

Damit ergibt sich

$$\left|\Delta\Theta\right| = \frac{A}{E}\left\{\left(\frac{b_1}{a}\right)\cdot K_o\left(\frac{b_1}{a}\right)\cos\alpha_1 - \left(\frac{b_2}{a}\right)\cdot K_o\left(\frac{b_2}{a}\right)\cos\alpha_2 - \left(\frac{b_3}{a}\right)\cdot K_o\left(\frac{b_3}{a}\right)\cos\alpha_3\right\}$$

und nach Einsetzen von A.I.3. und A.I.4. sowie Vernachlässigung aller Glieder mit höherer als erster Ordnung von z (wie dies schon in A.I.3. und A.I.4. getan wurde)

$$\left|\Delta\Theta\right| = \frac{3}{4}\,\frac{A}{E}\,\frac{c_o}{a}\Theta\left\{\frac{L}{a}\cdot K_1\left(\frac{L}{a}\right) - 2K_o\left(\frac{L}{a}\right)\right\} \qquad \text{(A.I.5)}$$

Mit der (für $\frac{L}{a} \gtrsim 5$ ausgezeichneten*) Näherung für die modifizierten Bessel-Funktionen $K_n$

---

* Zn: L/a = 7; Mg: L/a = 8,45

$$K_n\left(\frac{L}{a}\right) \approx \sqrt{\frac{\pi a}{2 \cdot L}}\; e^{-\frac{L}{a}} \quad \text{ergibt sich} \qquad \text{(A.I.6)}$$

$$|\Delta\Theta| = \frac{3}{4}\,\frac{A}{E}\,c_o\,\Theta\,\sqrt{\frac{\pi}{2 \cdot L \cdot a}}\left\{\frac{L}{a} - 2\right\} e^{-\frac{L}{a}} \qquad \text{(A.I.7)}$$

Die Ablenkung der Flugbahn zur Achse ist demnach für kleine Winkel $\Theta$ unabhängig vom azimutalen Einfallswinkel $\Phi$; für "achsennahe Strahlen" wirkt der Ring wie eine Linse der Brennweite

$$f^{\langle 0001\rangle} = \frac{c_o}{2}\,\frac{\Theta}{|\Delta\Theta|} = \frac{1}{3}\,\frac{2a}{L-2a}\,\sqrt{\frac{2}{\pi}\,L \cdot a}\,\frac{E}{A} \cdot e^{\frac{L}{a}} \qquad \text{(A.I.8)}$$

(A.I.5) unterscheidet sich von einer von LEIBFRIED /138/ abgeleiteten Beziehung für die Ablenkung des fcc-Vierer-Ringes um die $\langle 100\rangle$-Richtung nur durch den Zahlenfaktor $\frac{3}{4}$. Berücksichtigt man die veränderten Größen $c_o$ und L, so kann aus (A.I.8) z.B. errechnet werden, daß an Aluminium die Brennweite des Vierer-Ringes um $\langle 100\rangle$ etwa das 3,5-fache der Brennweite eines Dreier-Ringes um $\langle 111\rangle$ beträgt.

Faßt man die $\langle 0001\rangle$-Emission als Folge korrelierter Stöße in $\langle 0001\rangle$ auf, wobei die Fokussierung durch Nachbaratomreihen vermittelt wird, so läßt sich eine Fokussierungsenergie $E_f^{\langle 0001\rangle}$ mittels $|\Delta\Theta(E_f)| = 2 \cdot \Theta$ definieren:

$$E_f^{\langle 0001\rangle} = \frac{3}{2}\,\sqrt{\frac{\pi}{2 \cdot L \cdot a}} \cdot A \cdot \frac{c_o}{2}\left\{\frac{L}{2a} - 1\right\} e^{-\frac{L}{a}} \qquad \text{(A.I.9)}$$

Für Magnesium und Zink ergeben sich damit*

$$\text{Mg: } E_f^{\langle 0001\rangle} = 29 \text{ eV} \qquad \text{Zn: } E_f^{\langle 0001\rangle} = 165 \text{ eV}$$

LEHMANN & LEIBFRIED /136/ führten für die Impulsnäherung eine Fehlerabschätzung durch, aus welcher entnommen werden kann, daß im Energiebereich um $E_f$ (A.I.2) gerade noch angewandt werden darf. Die

* Mg: $A = 5{,}4 \cdot 10^3$ eV Zn: $A = 8{,}57 \cdot 10^3$ eV $a = 0{,}219$ Å

Abweichung beträgt allerdings mehr als 10 %. Für $E < E_f \cdot \frac{1}{2}$ wird nach /136/ die Impulsnäherung untragbar. Der sich zu

$$\Lambda^{\langle 0001\rangle} = \frac{\Theta_2}{\Theta_1} = \frac{c_o}{a \ln(\frac{2A}{E})} - 1 - \frac{E_f}{E}\left\{\frac{c_o}{a \ln(\frac{2A}{E})} - 2\right\}$$

ergebende Fokussierungsparameter beschreibt daher dem Verlauf der Impulsänderung entlang der Folge nur ab $E > E_f/2$ annähernd richtig*.

Die Hauptfehlerquelle in den Berechnungen von $E_f$ und $\Lambda(E)$ liegt in der Annahme starrer Atomringe. WEYSENFELD /114/ konnte in seiner Berechnung des $\langle 100\rangle$ -Fokussierungsparameters von fcc-Metallen eine erheblich bessere Übereinstimmung mit den Maschinenrechnungen von GIBSON et al. /22/ erzielen, indem er die Relaxation der fokussierenden Ringe näherungsweise berücksichtigte. Wegen des Auftretens transzendenter Gleichungen ist eine geschlossene Darstellung allerdings nicht möglich.

Für den zentralen Stoß eines Atomes mit einem Ring regulärer Atomanordnung wurde von ANDERSEN & SIGMUND /109/ eine Lösung angegeben, welche bis knapp über den Bereich der Bindungsenergie Gültigkeit besitzt. Das Mehrkörperproblem wird danach durch eine geeignete Relativkoordinatentransformation auf die Streuung eines Teilchens an einem elliptischen Potentialfeld zurückgeführt. Die Äquipotentialflächen dieses Feldes lassen sich in den Scheiteln durch Kugelflächen annähern; von besonderer Bedeutung für das vorliegende Problem ist die Näherung für große Stoßparameter (Krümmungskugel im Hauptscheitel), da damit Energieverluste beim zentralen Stoß durch den Ring um die $\langle 0001\rangle$ -Stoßrichtung berechnet werden können. In diesem Falle ergibt sich für den Energieverlust

$$\Delta E = 3 \cdot E \cdot \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \left(1 - \frac{3}{4}\sin^2 \frac{\vartheta}{2}\right) \qquad (A.I.10)$$

* siehe hierzu aber S 108

wobei der Streuwinkel $\bar{\Theta}$ im reduzierten System gegeben ist durch

$$\sin^2 \frac{\bar{\Theta}}{2} = \frac{\frac{L}{2a} - 1}{\left(\frac{L}{4a} + \frac{E}{2A} \cdot e^{L/a}\right)^2 - \frac{E}{A} \cdot e^{L/a}} \qquad \text{(A.I. 11)}$$

und in das Laborsystem umgerechnet werden kann mittels

$$\operatorname{tg} \vartheta = 2 \cdot \operatorname{ctg} \frac{\bar{\Theta}}{2} \qquad \text{(A.I. 12)}$$

Der Winkel $\vartheta$ ist der Flugwinkel der angestoßenen Ringatome zur Fluggeraden des stoßenden Atoms. Die Beziehungen (A.I. 10) und (A.I. 11) wurden für mehrere hcp-Metalle ausgewertet, die Ergebnisse an Zink sind in Abb. 29 dargestellt und an jener Stelle auch besprochen.

In die Darstellung der Abhängigkeit des Energietransfers T ($= \Delta E/3$) auf ein Ringatom wurden auch die Ergebnisse für die Impulsnäherung mit aufgenommen. Danach beträgt die Differenz beider Kurven bei $E_f/2$ erst etwa 30 %. Der Fehler in der Berechnung der Streuwinkel ist nur halb so groß ($\Delta E \sim \Delta p^2 \sim |\Delta\theta|^2$). Dies zeigt, daß die Anwendung der Impulsnäherung (A.I. 2) über ein weiteres Gebiet zulässig ist, als aus der Fehlerbetrachtung von LEHMANN & LEIBFRIED zu folgern war. Ein Vergleich mit den von ROBINSON /139/ auf numerischem Wege berechneten Streuwinkeln bestätigt dies.

## A. II. Einfluß von Keimbildung und Kondensation auf die Abbildung von Emissionsverteilungen auf Auffängern

Bei der Anwendung der Auffängertechnik zur Untersuchung der räumlichen Emissionsverteilung hat man darauf zu achten, daß die Emissionscharakteristik verzerrungsfrei als Niederschlagsverteilung wiedergegeben wird. Störungen der Abbildungstreue haben vor allem zwei Ursachen:

a) Abweichungen der Auffängergeometrie von der Kugelsymmetrie,
b) unvollständige Kondensation des zerstäubten Materials am Kollektor.

Auf die geometrisch bedingten Verzerrungen wurde von WEHNER et al. /125/, ROBINSON et al. /115/ und ausführlich von SCHULZ et al. /113/ hingewiesen. Daß unvollständige Kondensation nicht, wie man zunächst vermuten würde, zu einer das gesamte Niederschlagsmuster gleichmäßig betreffenden Schwächung der Massenbelegung führt, sondern zu einer Überbetonung der Emissionsmaxima, soll im folgenden gezeigt werden.

Für die Keimbildungsrate I ergibt sich nach der VOLLMERschen Theorie der heterogenen Keimbildung*

$$I = C_1 \cdot \dot{n}_e \cdot \exp\left\{ - \frac{C_2}{T_g^3 \cdot \ln^2 \left(\frac{\dot{n}_e}{\dot{n}_\infty}\right)} \right\} \qquad \text{(A. II. 1)}$$

wobei die systemspezifischen Konstanten $C_1$ und $C_2$ sich berechnen aus

$$C_1 = \left[ \frac{\Delta G^*}{3\pi k T_g i^{*2}} \right]^{1/2} \cdot 2 \cdot r^* \cdot \sin\chi \cdot a_o \cdot n_o \cdot \exp\left\{ \frac{1}{kT} (\Delta G_{des} - \Delta G_{od}) \right\} \qquad \text{(A. II. 2)}$$

$$C_2 = \frac{16 \pi \sigma_{KD}^3 \cdot v^2}{3k^3} \Phi \qquad \text{(A. II. 3)}$$

Bezüglich der verwendeten Symbole sei auf das Verzeichnis am Ende des Kapitels verwiesen.

* die Ableitung folgt der von HIRTH & POUND /140/. Die Dampfdrücke wurden gemäß $\dot{n} = p \cdot (2\pi mkT)^{-1/2}$ in Teilchenflußdichten umgerechnet.

Aus den Beziehungen (A. II. 1) und (A. II. 3) ist zu ersehen:

1) die Keimbildungsrate I ist nur dann dem Fluß der eintreffenden Teilchen $\dot{n}_e$ proportional, wenn der Einfluß der Exponentialfunktion klein ist, d. h.

$$\frac{d}{d\dot{n}_e} \exp\left\{ - \frac{C_2}{T_B^3 \ln^2 (\frac{n_e}{n})} \right\} \ll 1 \quad ;$$

2) die verzerrende Exponentialfunktion hängt stark von der Substrattemperatur $T_B$ ab.

Am Beispiel eines auf einem Kupferauffänger kondensierenden Kadmium-Atomstrahles wurden Modellrechnungen durchgeführt. Dieses System wurde gewählt, weil hierfür in der Literatur einige Werte* vorliegen /140/ . Abb. A. II. 1 zeigt den Verlauf der Exponentialfunktion aus (A. II. 1) in Abhängigkeit vom Übersättigungsverhältnis. Beide oben erwähnten Konsequenzen sind darin gut erkennbar.

Bei Zerstäubungsmessungen an Einkristallen ändert sich die Bestäubungsrate $\dot{n}_e$ am Auffänger mit dem Emissionswinkel. Nimmt man für die Emissionscharakteristik z. B. eine Gauß-Verteilung der Form

$$\dot{n}_e(\Theta) = \dot{n}_e(O) \cdot \exp\left\{ - \left( \frac{\operatorname{tg} \Theta}{\mu} \right)^2 \right\} \qquad \text{(A. II. 4)}$$

an, so fällt das Übersättigungsverhältnis von $\dot{n}_e(\Theta) / \dot{n}_\infty$ monoton ab.

In welchem Maße sich dies auf die Niederschlagsverteilungen auswirkt, ist in Abb. A. II. 2 dargestellt. Unter der Annahme einer Bestäubungsrate im spot-Maximum von $\dot{n}_e(O) = 10^{13}$ Atomen/s·mm$^2$ wurde die Verzerrung der vorgegebenen Verteilung für 3 verschiedene Auffängertemperaturen berechnet.

---

* Wertvolle Hinweise und Richtwerte liefern auch die Arbeiten von POPPA /141/ und HUDSON et al. /142/.

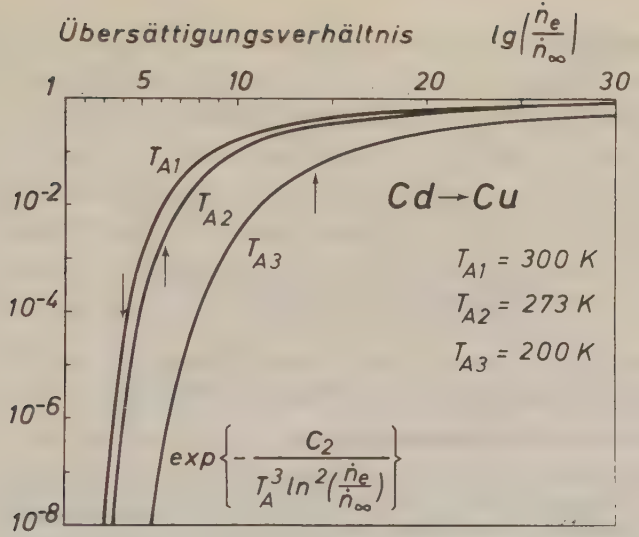



Abb. A. II. 1: Abhängigkeit der verzerrenden Exponentialfunktion vom Übersättigungsverhältnis am Beispiel eines auf einer Kupferoberfläche kondensierenden Kadmium-Atomstrahles ($\chi = 90^\circ$, $\sigma_{KD} = \sigma_\infty/3 = 255$ erg · cm$^{-2}$)
Parameter: Temperatur des Auffängers
Die Pfeile an den 3 Kurven bezeichnen das maximale Übersättigungsverhältnis für die in Abb. II. 2. gewählte Bestäubungsrate im Emissionsmaximum

Ein experimentelles Ergebnis zeigt Abb. A. II. 3. Es wurde gewonnen durch Zerstäubung eines Zink (0001)-Kristalles mit 20 keV $Ar^+$-Ionen. Als Auffänger diente eine 200 µm starke Polyesterfolie. Ähnliche Verzerrungen wurden auch festgestellt, wenn statt der Polyesterfolien Glimmer als Auffänger diente; an Glimmerauffängern waren die Niederschlagsverteilungen stets breiter.

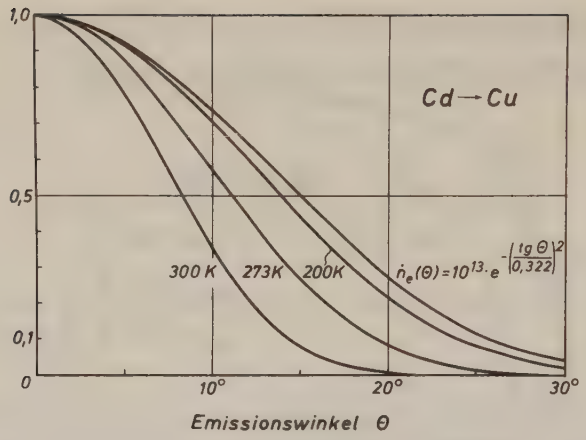



Abb. A.II.2.: Verzerrung einer vorgegebenen Verteilung durch unvollständige Kondensation für Auffängertemperaturen von 200 K, 273 K und 300 K. Modellrechnung unter den in Abb. A.II.1 angegebenen Bedingungen.
Parameter: Auffängertemperatur

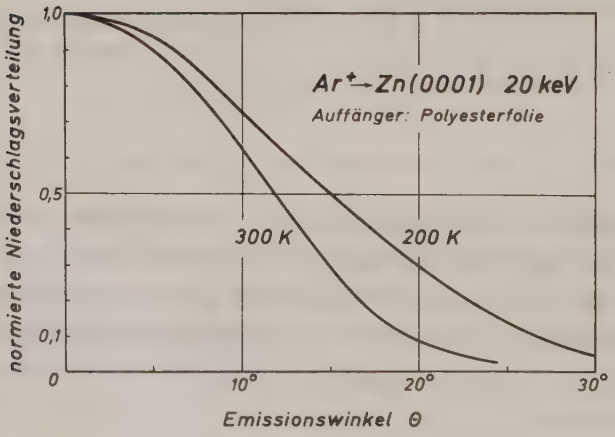



Abb. A.II.3: Verzerrte Wiedergabe einer Zink-$\langle 20\bar{2}3 \rangle$-Emissionscharakteristik auf ungekühltem Auffänger. Photometrische Auswertung. Parameter: Auffängertemperatur

Abb. A.II.1 zeigt, daß die Abbildungstreue des Verfahrens mit dem Übersättigungsverhältnis wächst. Eine hohe Übersättigung kann am einfachsten durch Kühlung des Kollektors erreicht werden, da einer Erhöhung der Ionenstromstärke Grenzen gesetzt sind. Der Einsatz metallischer Auffänger für eine wirkungsvolle Tiefkühlung sollte bei Messungen der Emissionscharakteristik daher angestrebt werden. Dies empfiehlt sich nicht nur aus Gründen einer effektiven Abfuhr von Strahlungs- und Kondensationswärme von der Oberfläche des Auffängers:

die hohen Desorptionsenergien an Metallen vermindern den an Glas /143/ und Kunststoff /144/ bekannten Effekt, daß die dünne Schicht an einem bereits gebildeten Niederschlag wegen der höheren Haftwahrscheinlichkeit schneller wächst als an noch unbedeckten Stellen;

nach CABRERA /145/ und ZWANZIG /146/ ist die Wahrscheinlichkeit für Streuung von Atomen an Festkörperoberflächen solange gering, als die Energie der eintreffenden Atome $< 20 \cdot \Delta G_{des}$ – eine für die hohen Energien der zerstäubten Atome wichtige Feststellung.

Es sei abschließend darauf hingewiesen, daß die zuletzt erwähnten Streuprozesse (Reflexionen) in der Ableitung von (A.II.1) nicht berücksichtigt wurden. Der dieser Beziehung zugrunde liegende Vorgang ist, daß ein die Auffängeroberfläche treffendes Atom an dieser im Mittel die Zeit $\tau \sim \exp(-\Delta G_{des}/kT_\Phi)$ verbleibt, bevor es wieder verdampft; zu einer Keimbildung kann es kommen, wenn das Adatom während dieser Zeit auf ein weiteres Adatom trifft. Reflexionen von Atomen an Oberflächen wurden nur in wenigen Sonderfällen berichtet* (dies gilt nicht für Moleküle!). Allerdings liegen im Energiebereich $> 20$ eV zu wenige experimentelle Daten vor /110/, /147/, /148/. Messungen von SMITH et al. /40/ und THOMPSON et al. /49/ ergaben jedoch auch unter Zerstäubungsbedingungen Haftwahrscheinlichkeiten nahe an 1.

* Die Abschätzung des sticking factors von NELSON & THOMPSON /20/ für zerstäubte Atome muß daher als unrichtig angesehen werden. Auch die Interpretation der Messungen von CHAPMAN et al. /147/ ist anfechtbar.

Symbolverzeichnis für Anhang A. II

| | |
|---|---|
| $a_o$ ... | Sprunglänge bei Oberflächendiffusion (bei Metallen in der Größenordnung der Gitterkonstanten) |
| $\Theta$ ... | Winkel gegen das Emissionsmaximum (spot-Zentrum) |
| $\Phi(\chi)$ | $= \frac{1}{4}(2-3\cos\chi + \cos^3\chi)$, geometr. Funktion des Kontaktwinkels $\chi$ |
| $\Delta G^*$ ... | freie Bildungsenthalpie des (kritischen) Keimes |
| $\Delta G_{des}$ | freie Aktivierungsenthalpie für Desorption eines Adatoms |
| $\Delta G_{od}$ | freie Aktivierungsenthalpie für Oberflächendiffusion |
| I ... | Keimbildungsrate pro Flächeneinheit |
| $i^*$ ... | Anzahl der Atome in einem Keim |
| m ... | Atommasse |
| $\mu$ ... | Parameter für die Halbwertsbreite in Verteilungsfunktion |
| $\dot{n}_e$ ... | Flußdichte der auf einem Auffänger (Substrat) eintreffenden Atome |
| $\dot{n}_\infty$ ... | die dem Sättigungsdampfdruck entsprechende Atomstromdichte |
| $n_o$ ... | Konzentration der Gitterplätze an der Oberfläche |
| $r^*$ ... | Radius des kugelkalottenförmig angenommenen Keimes |
| $\sigma_{KD}$ | Grenzflächenenergie zwischen Kondensat und Dampf (insbesondere für gekrümmte Oberflächen) |
| $\sigma_\infty$ | Grenzflächenenergie für unendlichen Krümmungsradius |
| $T_A$ ... | abs. Temperatur des Auffängers |
| v ... | Atomvolumen |
| $\chi$ ... | Kontaktwinkel (Maß für den Benetzungsgrad des Kondensates auf dem Substrat) |

Zusammenfassung

Der Beitrag fokussierender Stoßfolgen zur Kathodenzerstäubung von Einkristallen sollte durch Messung der räumlichen Emissionsverteilung untersucht werden. Hierfür eignen sich in besonderem Maße Metallkristalle mit der Struktur hexagonal dichtester Kugelpackung: ihre $\langle 11\bar{2}0\rangle$— Gittergerade unterscheidet sich von der klassischen Fokussonenrichtung, der $\langle 110\rangle$ -Gittergeraden kubisch-flächenzentrierter Kristalle, nur unwesentlich; hingegen bietet die $\langle 20\bar{2}3\rangle$ -Gittergerade die Möglichkeit, Emissionsprozesse zu untersuchen, in denen fokussierende Stoßfolgen mit Sicherheit auszuschließen sind.

Erste Versuche an Zink - Einkristallen zeigten aufschlußreiche, doch im Hinblick auf die Erfassung eventueller Fokussonenbeiträge störende Nebeneffekte. Die Untersuchungen wurden daher an Magnesium fortgesetzt. Hierfür mußte ein Schichtdickenmeßverfahren entwickelt werden, welches, unabhängig vom chemischen Zustand (Oxidation) der dünnen Schicht, die Massenbelegung der Niederschlagsprofile zu bestimmen erlaubt; mit Hilfe einer Elektronensonde konnten Niederschlagsmuster elementspezifisch ausgewertet werden - insbesondere auch auf metallischen Auffängern.
Der Einsatz von Metallauffängerfolien wurde notwendig, um eine verzerrte Abbildung der Emissionsverteilung durch unvollständige Kondensation zu vermeiden.

Die Emissionscharakteristik folgender Magnesium-Kristalloberflächen wurde gemessen: (0001), $(10\bar{1}0)$, $(11\bar{2}0)$ und $(36\bar{9}8)$.
An allen diesen Ebenen zeigte sich, daß die anisotrope Emission einer stets dominierenden random-Zerstäubung überlagert ist.
Die Halbwertsbreite sowohl der $\langle 20\bar{2}3\rangle$ - als auch der $\langle 11\bar{2}0\rangle$ -Emissionscharakteristik nimmt mit fallender Ionenmasse von $Xe^+$ zu $Ne^+$ hin zu; genau den entgegengesetzten Verlauf fanden SCHULZ & SIZMANN für die $\langle 110\rangle$ -Emission von Gold. Es ist nicht möglich, diese Projektilmassenabhängigkeit in einem Modell zu erklären, welches den überwiegenden Teil

der Zerstäubungsprozesse fokussierenden Stoßfolgen zuschreibt. In einem Alternativmodell hingegen, welches die anisotrope Emission durch Stösse in einer geordneten Oberflächenschicht beschreibt, folgt dieses gegensätzliche Verhalten der Gold- bzw. Magnesium-Emissionsverteilungen aus dem Energiespektrum der oberflächennahen Rückstoßatome.

Ein Vergleich zwischen $\langle 20\bar{2}3\rangle$ - und $\langle 11\bar{2}0\rangle$ - Emissionsverteilungen zeigt, daß letztere bei $Xe^+$-Beschuß eine um $3^o$ geringere Halbwertsbreite aufweist – d.i. eine Verminderung von weniger als 20%.
Der Temperaturgang der Halbwertsbreiten zeigt im Bereich $100K \leq T_{Kr} \leq 370K$ einen linearen Verlauf; der Anstieg der Geraden ist für die $\langle 11\bar{2}0\rangle$ – und $\langle 20\bar{2}3\rangle$ – Emissionsverteilung gleich und beträgt bei $Xe^+$-Beschuß $1,8\,^o/100K$. Bei $Ar^+$-Beschuß liegt die Steigung rd. 10% tiefer.
Aus der Emissionscharakteristik einer Kristalloberfläche, welche von beiden zu vergleichenden Stoßrichtungen unter demselben Winkel zur Normalen durchsetzt wird, läßt sich ein Fokussonenanteil an der anisotropen Zerstäubung in $\langle 11\bar{2}0\rangle$ zu etwa 25% abschätzen.

Abschließend wurden zur Gegenüberstellung einige Zerstäubungsmuster an einem kubisch-flächenzentrierten Kristall untersucht. Es zeigte sich für die $\langle 110\rangle$ –Emission einer Aluminium (111)-Ebene gute Übereinstimmung mit der $\langle 11\bar{2}0\rangle$ -Zerstäubung von Magnesium. Im Vergleich zur Gold $\langle 110\rangle$ –Emissionsverteilung ist die Halbwertsbreite der Al $\langle 110\rangle$ – Emission um den Faktor 1,8 breiter.

Insgesamt muß aus den in der vorliegenden Arbeit berichteten Experimenten geschlossen werden, daß die anisotrope Zerstäubung von Magnesium - und Aluminiumeinkristallen weitgehend durch Oberflächenstösse bestimmt wird. Der Einfluß weitreichender fokussierender Stoßfolgen auf die Emissionscharakteristik ist gering; dies auch für Metalle mittlerer bis hoher Ordnungszahl anzunehmen, legt ein Vergleich der Emissionsverteilungen nahe.

Schrifttum

/1/ Sigmund, P.: Phys. Rev. 184, 383 (1969)

/2/ Andersen, H.H.: Appl. Phys. Lett. 3, 85 (1968)
Radiat. Eff. 3, 51 (1970)

/3/ Nelson, R.S.: Phil. Mag. 11, 291 (1965)

/4/ Behrisch, R. in: Ergebn. Exakt. Naturwiss. 35, 295 (1964)
Ed.: S. Flügge, F. Trendelenburg

/5/ Kaminsky, M.: "Atomic and Ionic Impact Phenomena on Metal Surfaces", Springer 1965, Berlin-Heidelberg-New York

/6/ Carter, G., J.S. Colligon: "Ion Bombardment of Solids" Heinemann Educational Books Ltd., London 1968

/7/ Thompson, M.W., "Defects and Radiation Damage in Metals" Cambridge Univ. Press 1969

/8/ Nelson, R.S. " The Observation of Atomic Collisions in Crystalline Solids" North Holl. Publ. Comp. 1968 Amsterdam

/9/ v. Hippel, A.: Ann. Physik 80, 672 (1926)
ibid. 81, 1043 (1926)

/10/ Townes, Ch.H.: Phys. Rev. 65, 319 (1944)

/11/ Wehner, G.K.: J. Appl. Phys. 26, 1056 (1955)
Phys. Rev. 102, 690 (1956)

/12/ Stark, J.: Z. Elektrochem. 14, 752 (1908)
ibid. 15, 509 (1909)

/13/ Holst, G.: Physica 4, 68 (1924)
Lamar, E.S., K.T. Compton: Science 80, 541 (1934)
Kingdom, G.H., I. Langmuir: Phys. Rev. 22, 148 (1936)

/14/ Yurasova, V.E.: Sov. Phys. -Techn. Phys. 3, 1806 (1958)

/15/ Yurasova, V.E., I.V. Orfanov: Sov. Phys. -JETP 37, 689 (1960)

/16/ Perović, B.: Bull. Inst. Nucl. Sci. "Boris Kidrich" 11, 37 (1961)

/17/ Cobić, B., B. Perović: IV. Int. Symp. Ion. Phen. Gases, North Holland Publ. Co., Amsterdam 1960

/18/ Perović, B.: Proceed. V. Int. Conf. Ion. Phen. Gases, München 1961

/19/ Thompson, M.W.: Phil. Mag. 4, 139 (1959)

/20/ Nelson, R.S., M.W.Thompson: Proc.Roy.Soc. A 259, 458 (1961)

/21/ Silsbee, R.H.: J.Appl.Phys. 28, 1246 (1957)

/22/ Gibson, J.B., A.N.Goland, M.Milgram, G.H.Vineyard: Phys.Rev. 120, 1229 (1960)

/23/ Nelson, R.S., M.W.Thompson, H.Montgomery: Phil.Mag. 7, 1385 (1962)

/24/ Nelson, R.S., M.W.Thompson: Phil.Mag. 7, 1425 (1962)

/25/ Leibfried, G.: J.Appl.Phys. 30, 1388 (1959)
ibid. 31, 117 (1960)

/26/ Lehmann, Chr., G.Leibfried: Z.Physik 162, 203 (1961)

/27/ Baroody, E.M.: Phys.Rev. 124, 745 (1961)

/28/ Lehmann, Chr., P.Sigmund: phys.stat.sol. 16, 507 (1966)

/29/ Martynenko, T.P.: Sov.Phys.-Sol.State 9, 2232 (1968)
ibid. 9, 2887 (1968)
ibid. 10, 2274 (1969)

/30/ Krutenat, R.C., C.Pancera: J.Appl.Phys. 41, 4953 (1970)

/31/ Chapman, G.E., J.C.Kelly: Aust.J.Phys. 20, 283 (1967)

/32/ Schulz, F., R.Sizmann: Proc. Int.Conf.Ion.Phen.Gases Wien 1967

/33/ v.Jan, R., R.S.Nelson: Phil.Mag. 17, 1017 (1968)

/34/ Robinson, M.T., A.L.Southern: J.Appl.Phys. 39, 3463 (1968)
Conf.Atom.Coll.Penetration Studies Energet. Ion Beams, Chalk River 1967

/35/ Andersen, H.H., P.Sigmund: Risö Report No 103 (1965)

/36/ Frère, R.: phys.stat.sol. 3, 1252 (1963)
ibid. 3, 1441 (1963)
ibid. 3, 1453 (1963)

/37/ Dederichs, P.H., G.Leibfried: Z.Physik 170, 320 (1962)

/38/ Koedam, M.: Proefschrift Univ. Utrecht (1961)

/39/ Ashmyanskii, R.A., M.B. Beniaminovich, V.I. Veksler: Sov. Phys. -Sol. State 7, 1314 (1965)

/40/ Musket, R.G., H.P. Smith, Jr.: J. Appl. Phys. 39, 3579 (1968)
ibid. 40, 3859 (1969)

/41/ Anderson, G.S.: J. Appl. Phys. 33, 2017 (1962)

/42/ Cunningham, R.L., K.V. Gow, Joyce Ng-Yelim: J. Appl. Phys. 34, 984 (1963)

/43/ Schulz, F.: Dissertation, Techn. Hochschule München (1967)

/44/ Kopitzki, K., H.-E. Stier, O. Beer, H. Beuscher: Proceed. VI. Int. Conf. Ion Gases (1963)

/45/ Thompson, M.W.: Phys. Letters 6, 24 (1963)

/46/ Stuart, R.V., G.K. Wehner: J. Appl. Phys. 35, 1819 (1964)
ibid. 40, 803 (1969)

/47/ Beuscher, H., K. Kopitzki: Z. Physik 184, 382 (1965)

/48/ Hulpke, E., Ch. Schlier: Z. Physik 207, 294 (1967)

/49/ Thompson, M.W., B.W. Farmery, P.A. Newson: Phil. Mag. 18, 361 (1968)
Thompson, M.W.: Phil. Mag. 18, 377 (1968)
Farmery, B.W., M.W. Thompson: Phil. Mag. 18, 415 (1968)

/50/ Politiek, J., J. Kistemaker: Radiat. Eff. 2, 129 (1969)

/51/ Oechsner, H.: Z. Physik 238, 433 (1970)

/52/ Harrison, Jr., D.E., J.P. Johnson III, N.S. Levy: Appl. Phys. Letters 8, 33 (1966)

/53/ Harrison, Jr., D.E., N.S. Levy, J.P. Johnson III, H.M. Effron: J. Appl. Phys. 39, 3742 (1968)

/54/ Harrison, Jr., D.E.: J. Appl. Phys. 40, 3870 (1969)

/55/ Robinson, M.T.: J. Appl. Phys. 40, 2670 (1969)

/56/ MacDonald, R.J.: Radiat. Eff. 3, 131 (1970)

/57/ Ostry, D., R.J. MacDonald: Phys. Letters 32A, 303 (1970)

/58/ Nicholas, J.F.: Acta cryst. 21, 880 (1966)

/59/ Hasiguti, R.R., R.Hanada, S.Yamaguchi: J.Phys.Soc.Japan 18, Suppl. III, 164 (1963)

/60/ Molchanov, V.A., V.Soshka, M.A.Faruk: Sov.Phys.-Tech.Phys. 8, 573 (1963)

/61/ Hofer, W.O., F.Schulz, R.Sizmann: Frühjahrstagung d.Deutsch. Physikal.Ges.eV., Regionalverband Bayern, München 1968
Hofer, W.O., R.Sizmann in Atomic Collision Phenomena in Solids, North Holland Publ.Co., Amsterdam-London (1970)

/62/ Wehner, G.: Z.Physik 193, 439 (1966)

/63/ Losch, W.H.P.: phys.stat.sol. (a) 2, 123 (1970)

/64/ Hacman, D.: Balzers Hochvakuum-Fachbericht (1965)

/65/ Mayer, H.: "Physik Dünner Schichten" I, S 206 ff
Wiss.Verlagsgesellsch.mbH, Stuttgart 1950

/66/ Chapman, G.E., J.C.Kelly: J.Scient.Instr. 44, 261 (1967)

/67/ Schumacher, D. in: "Vacancies and Interstitials in Metals"
Ed.: A.Seeger, D.Schumacher, W.Schilling, J.Diehl
North-Holland Publ.Comp., Amsterdam-London 1969

/68/ Malissa, H.: "Elektronenstrahlmikroanalyse"
Springer-Verlag, Wien-New York, 1966

/69/ Reuther, W.: Surface Sci. 25, 80 (1971)

/70/ Liebhafsky, H.A., H.G.Pfeiffer, E.H.Winslow, P.D.Zemany: "X-Ray Absorption and Emission in Analytical Chemistry", J.Wiley & Sons, Inc., New York - London - Sydney, 1966

/71/ Storm, E., H.I.Israel: "Photon Cross Sections from 1 keV to 100 keV for Elements 1 through 100"
Los Alamos Scient.Lab., Los Alamos, New Mexico (1967)

/72/ Hink, W., A.Ziegler: Z.Physik 226, 222 (1969)

/73/ Weber, W.: Diplomarbeit Universität München 1969

/74/ Steigerwaldt, H.H.: Optik 5, 470 (1969)

/75/ Braucks, F.W.: Optik 15, 242 (1958)

/76/ Tolansky, S.: "Multiple Beam Interferometry"
Oxford, Clarendon Press 1948

/77/ Sauerbrey, G.: Z. Physik 155, 206 (1959)

/78/ Bousquet, P.: J. Physique 25, 50 (1964)

/79/ Dahl, H., C.v. Fragstein, G. Schulz: Z. Physik 217, 409 (1968)

/80/ Hanszen, K.-J.: Thin Solid Films 2, 423 (1968)
ibid. 2, 509 (1968)

/81/ Robinson, J.W.: "Atomic Absorption Spectroscopy"
E. Arnold (Publ.) Ltd., London 1966

/82/ Holliday, J.E., E.J. Sternglass: J. Appl. Phys. 28, 1189 (1957)

/83/ Niedrig, H., P. Sieber: Z. Angew. Physik 31, 27 (1971)

/84/ Green, M., V.E. Cosslett: Proc. Phys. Soc. 78, 1206 (1961)
Cosslett, V.E., R.N. Thomas: Brit. J. Appl. Phys. 15, 1283 (1964)
ibid. 15, 883 (1964)

/85/ Kanter, H.: Brit. J. Appl. Phys. 15, 555 (1964)

/86/ Kulenkampff H., W. Spyra: Z. Physik 137, 416 (1954)

/87/ Sandström, A.E. in: "Handbuch d. Physik" 30, 78-245
Ed.: S. Flügge, Springer Verlag 1957

/88/ Nordfors, B.: Ark. f. Fysik 10, 279 (1955)

/89/ Buchholz, I.: Z. Physik 227, 440 (1969)

/90/ Mayer, H., J. Hölzl: phys. stat. sol. 18, 779 (1966)

/91/ Sweeney, W.E., R.E. Seebold, L.S. Birks: J. Appl. Phys. 31, 1061 (1960)

/92/ Chopra, K.L., M.R. Randlett, S.L. Bender: Rev. Sci. Instr. 39, 1755 (1968)

/93/ Wimmer, M., G. Wiech: Frühjahrstagung d. Deutsch. Physikal. Ges. eV
Regionalverband Bayern, München 1968
Physikal. Verhandlungen 1939 (1968) S133

/94/ Hofmann, L., G. Wiech, E. Zöpf: Z. Physik 229, 131 (1969)

/95/ Butz, R., H. Wagner: phys. stat. sol. (a), 3, 325 (1970)

/96/ Hink, W., J. Jessenberger, A. Ziegler: Z. Physik 226, 463 (1969)

/97/ Archard, G. D., T. Mulvey in "X-Ray Optics and X-Ray Microanalysis" S 393 New York: Academ. Press, 1963
Philibert, J., R. Tixier: Brit. J. Appl. Phys. 1, 685 (1968)

/98/ Brown, D. B., D. B. Wittry, D. F. Kyser: J. Appl. Phys. 40, 1627 (1969)

/99/ Green, M.: Proc. Phys. Soc. (London) 82, 204 (1963)
Bishop, H. E. in "X-Ray Optics and Microanalysis" S. 112 Ed.: R. Castaing et al. Paris 1966 Hermann & Cie
Murata, K., T. Matsukawa, R. Shimizu: Jap. J. Appl. Phys. 10, 678 (1971)
ibid. 10, 1290 (1971)

/100/ Schmitz, U., P. L. Ryder, W. Pitsch in "X-Ray Optics and Microanalysis" S 104, Ed.: G. Möllenstedt, K. H. Gaukler, Springer 1969, Berlin-Heidelberg-New York

/101/ Castaing, R., J. Descamps: J. Phys. Radium 16, 304 (1955)
Castaing, R., J. Henoc: Ref. /99/ S120

/102/ Dürr, G., W. O. Hofer, F. Schulz, K. Wittmaack: Z. Physik 246, 316 (1971)

/103/ Rie, K. T.: Bericht d. KFA Jülich, Nr. 304 (1965)

/104/ Rol, P. K.: Proefschrift Universität Amsterdam (1960)

/105/ Onderdelinden, D.: Proefschrift Univ. Leiden (1968)

/106/ Lindhard, J., Vibeke Nielsen, M. Scharff: Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 36, No. 10 (1968)

/107/ Winterbon, K. B., P. Sigmund, J. B. Sanders: Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 37, No. 14 (1970)

/108/ Wehner, G. K., G. S. Anderson, C. E. Kenknight: General Mills Electronics Division, Research Dep. Techn. Progr. Rep. 1963

/109/ Andersen, H. H., P. Sigmund: Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 34, No. 15 (1966)

/110/ Wallis, R. F., B. C. Clark, R. Herman in "The Structure and Chemistry of Solid Surfaces" Ed.: G. A. Somorjai; J. Wiley & Sons, New York 1968

/111/ Olson, N. Th., H. P. Smith, Jr.: AIAA-Journal 4, 916 (1966)
Olson, N. Th., H. P. Smith, Jr.: Phys. Rev. 157, 241 (1967)
Higgins, T. B., N. Th. Olson, H. P. Smith, Jr.: J. Appl. Phys. 39, 4849 (1968)

/112/ Molchanov, V.A., V.G.Tel'kovskii, V.M.Chicherov:
Sov.Phys.-Doklady 6, Nr.6, 486 (1961)

/113/ Schulz, F., R.Sizmann: Phil.Mag. 18, 269 (1968)

/114/ Weysenfeld, C.H.: Proefschrift Univ. Utrecht (1966)

/115/ Robinson, M.T., A.L.Southern: J.Appl.Phys. 38, 2969 (1967)
ibid. 40, 4982 (1969)

/116/ Cunningham, R.L., J.Ng-Yelim: J.Appl.Phys. 40, 2904 (1969)

/117/ Hasseltine, E.H., N.Th.Olsen, H.P.Smith:
J.Appl.Phys. 39, 1417 (1968)

/118/ Dubinskii, V.E., S.Ya.Lebedev: Phys.Letters 31A, 533 (1970)

/119/ Wehner, G.K., D.J.Hajicek: J.Appl.Phys. 42, 1145 (1971)

/120/ Stewart, A.D.G., M.W. Thompson: J.Materials Sci. 4, 56 (1969)

/121/ Elich, J.J.Ph., H.E.Roosendaal, H.H.Kersten, D.Onderdelinden,
J.Kistemaker: Radiat. Eff. 8, 1 (1971)

/122/ Chadderton, L.T., A.Johansen, L.Sarholt-Kristensen:
Radiation Eff. im Druck

/123/ Güntherschulze, A., W.Tollmien: Z.Physik 119, 685 (1942)

/124/ Wehner, G.K., D.Rosenberg: J.Appl.Phys. 31, 177 (1960)
Seeliger, R., K.Sommermeyer: Z.Physik 93, 692 (1935)
Patterson, H., D.H.Tomlin: Proc.Roy.Soc. 265, 474 (1961)
Snouse, Th.N.: NASA Technical Note TN D-2235 (1964)
Ramer, C.E., M.A.Narasimham:
J.Appl.Phys. 35, 1673 (1964)

/125/ Anderson, G.S., G.K.Wehner: J.Appl.Phys. 31, 2305 (1960)
ibid. 33, 2016 (1962)

/126/ Green, J.B., N.Th. Olson, H.P.Smith: J.Appl.Phys. 37, 4699 (1966)

/127/ Nelson, R.S.: Radiat. Eff. 7, 263 (1971)

/128/ Abrahamson, A.A.: Phys.Rev. 178, 76 (1969)

/129/ Gustafsson, O.: Ark.Fys. 40, 465 (1970)

/130/ Sigmund, P.: "Collision Theory of Displacement Damage, Ion Ranges, and Sputtering" Int. Summer School on "Interaction of Radiation with Matter" Predeal, Rumänien (1971)

/131/ Duesing, G., G. Leibfried: phys. stat. sol. 9, 463 (1965)

/132/ Sanders, J. B., J. M. Fluit: Physica 30, 129 (1964)

/133/ Lidiard, A. B. in "Atomic collision cascades in radiation damage" Ed.: M. W. Thompson Harwell 1964, AERE-R 4694 unveröffentlicht

/134/ Elich, J. J. Ph., H. E. Roosendaal, D. Onderdelinden: Radiat. Eff. 10, 175 (1971)

/135/ Sigmund, P.: unveröffentlicht

/136/ Lehmann, Chr., G. Leibfried: Z. Physik, 172, 465 (1963)

/137/ Brinkman, J. A.: J. Appl. Phys. 25, 961 (1954)

/138/ Leibfried, G.: Bestrahlungseffekte in Festkörpern B. G. Teubner Verlagsgesellschaft, Stuttgart 1965

/139/ Robinson, M. T.: ORNL-4556, UC-34 (1970)

/140/ Hirth, J. P., G. M. Pound: "Condensation and Evaporation" Pergamon Press, Oxford, Paris, London, Frankfurt 1963

/141/ Poppa, H.: J. Appl. Phys. 38, 3883 (1967)

/142/ Hudson, J. B., J. S. Sandejas: J. Vac. Sci. Techn. 4, 230 (1967)
Surface Sci. 11, 175 (1968)

/143/ Knudsen, M.: Ann. Physik 50, IV, 472 (1916)

/144/ Murakami, Y.: Japan. J. Appl. Phys. 10, 63 (1971)
ibid. 10, 965 (1971)

/145/ Cabrera, N.: Dis. Faraday Soc. 28, 16 (1959)

/146/ Zwanzig, R. W.: J. Chem. Phys. 32, 1173 (1960)

/147/ Chapman, B. N., D. S. Campbell: J. Phys. C, 2, 200 (1969)

/148/ Bøttiger, J., J. A. Davies, P. Sigmund, und K. B. Winterbon:
Radiat. Eff. 11, 61 (1971)
ibid. 11, 69 (1971)
ibid. 11, 133 (1971)

Danksagung

Herrn Prof. Dr. R. Sizmann, Sektion Physik der Universität München, danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit sowie deren Förderung durch zahlreiche Diskussionen und wertvolle Hinweise. Sein Interesse beeinflußte den Fortgang der Arbeit entscheidend.

Herrn Dr. F. Schulz, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH, München, bin ich für die Überlassung seines Beschleunigers sowie Unterstützung während der Durchführung der Arbeit zu großem Dank verpflichtet.

Herrn Prof. Dr. F. Wachsmann danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit am Institut für Strahlenschutz der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH durchführen zu können.

Den Mitarbeitern des Institutes für Strahlenschutz möchte ich für die ausgezeichnete Arbeitsatmosphäre und freundliche Anteilnahme meinen Dank aussprechen - mit eingeschlossen die Herren aus der Institutswerkstatt für die sorgfältige Durchführung der Arbeiten trotz so mancher eiliger Handskizze.

## Lebenslauf

| | |
|---|---|
| Geburt: | 19. Februar 1941 in Dresden, Deutschland |
| Eltern: | Liselotte Hofer, geb. Aé, Bibliothekarin<br>gestorben am 20. Juli 1942<br>Dr. Helmut Hofer, Zoologe<br>Univ.-Prof. |
| Staatsbürgerschaft: | Österreich |
| Schulausbildung: | 1947/51 Volksschule in Enzesfeld, N.Ö.<br>1951/59 Realgymnasium in Berndorf, N.Ö.<br>Reifeprüfung am 13. Juli 1959 |
| Militärdienst: | 1959/60 Flieger-Tel-TrSch., Langenlebarn, N.Ö.<br>Dienstgrad: Leutnant d. Res. |
| Studium: | Technische Hochschule in Wien<br>Studienrichtung Technische Physik<br>Studienbeginn im Oktober 1960<br>2. Staatsprüfung (Diplom): 18. März 1966<br>Akademischer Grad: Diplomingenieur<br><br>Universität München, Sektion Physik<br>Beginn der Dissertation im Mai 1966 |
| Beruf: | Seit dem 1. Mai 1966 wissenschaftlicher Mitarbeiter in der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH, Neuherberg bei München |
| Eheschließung: | seit dem 1. Oktober 1966 verheiratet mit Dr. Ingeborg Hofer, geb. Fuhrmann, Mikrobiologin; 1 Kind. |